(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号

特許第3680367号

(P3680367)

(45)発行日　平成17年8月10日(2005.8.10)　(24)登録日　平成17年5月27日(2005.5.27)

(51)Int.Cl.[7]	F I		
C04B 35/16	C04B	35/16	Z
C03C 8/14	C03C	8/14	
H01B 3/02	H01B	3/02	A
H05K 1/03	H05K	1/03	610D

請求項の数 1　(全 42 頁)

(21)出願番号　特願平7-210850
(22)出願日　平成7年8月18日(1995.8.18)
(65)公開番号　特開平8-333157
(43)公開日　平成8年12月17日(1996.12.17)
審査請求日　平成13年6月20日(2001.6.20)
(31)優先権主張番号　特願平6-195806
(32)優先日　平成6年8月19日(1994.8.19)
(33)優先権主張国　日本国(JP)
(31)優先権主張番号　特願平7-82262
(32)優先日　平成7年4月7日(1995.4.7)
(33)優先権主張国　日本国(JP)

(73)特許権者　000005108
株式会社日立製作所
東京都千代田区丸の内一丁目６番６号
(74)代理人　100075096
弁理士　作田　康夫
(72)発明者　石原　昌作
神奈川県横浜市戸塚区吉田町２９２番地
株式会社日立製作所　生産技術研究所内
(72)発明者　児玉　弘則
神奈川県横浜市戸塚区吉田町２９２番地
株式会社日立製作所　生産技術研究所内
(72)発明者　岡本　正英
神奈川県横浜市戸塚区吉田町２９２番地
株式会社日立製作所　生産技術研究所内

最終頁に続く

(54)【発明の名称】配線基板

(57)【特許請求の範囲】

【請求項１】

導体からなるビアおよび配線と、セラミックからなる基材とを備える配線基板において、上記セラミックは、該セラミックの総体積を１００％とすると、７０体積％の非晶質ガラスと、３０体積％のフィラーとが焼結して得られる焼結体であり、上記非晶質ガラスは、８４．０重量％の酸化珪素（SiO_2）、９．０重量％の酸化硼素（B_2O_3）、４．０重量％の酸化カリウム（K_2O）、及び３．０重量％のアルミナ（Al_2O_3）からなり、上記フィラーはムライトであることを特徴とする配線基板。

【発明の詳細な説明】

【０００１】

【産業上の利用分野】

本発明は配線基板と、該配線基板を提供する技術とに係り、特にバインダとして有機バインダを用い、導体として銅等の卑金属導体材料を用い、高密度配線を行なう場合に好適な配線基板と、該配線基板の製造方法と、該配線基板を製造するための非晶質ガラスおよびセラミック組成物とに関する。

【０００２】

【従来の技術】

セラミック配線基板は、小型化が可能で、信頼性が高いという理由から、半導体チップや小型電子部品を搭載するための基板として用いられ、電子計算機、通信機器、家電品等に組み込まれている。

【０００３】
セラミック配線基板のなかでも、グリーンシートを用いる湿式セラミック配線基板は、高密度配線に有利であるため、よく用いられる。この湿式セラミック配線基板は、つぎのような製造方法により作製される。まず、セラミック原料粉末を有機樹脂で結合したセラミック生シート（以下、グリーンシートと呼ぶ）を作製し、続いてこのグリーンシートに貫通孔（スルーホール）をあけた後、導体ペーストを用いて表面に配線パターンを形成するとともに、シートを複数枚積層したときに各シートの配線パターンを接続するため、貫通孔にも導体ペーストを充填する。次に、このように配線パターンを形成したグリーンシートを所定枚数積み重ね積層圧着した後、焼成する。以上により、セラミック多層配線基板が作製される。

【０００４】
なお、シリコンを用いた半導体集積回路素子を搭載する多層配線基板には、従来より、絶縁材料として、アルミナ（Al_2O_3）が主に用いられ、導体材料として、アルミナと同時焼結可能な高融点金属であるモリブデン（Ｍｏ）やタングステン（Ｗ）が用いられている。しかし、アルミナの熱膨張係数は約7×10^{-6}／℃と大きいので、アルミナ基板にシリコン半導体素子を直接搭載する場合には、それらの接続導体部に大きな応力が作用し、信頼性が得られない。さらに、アルミナの比誘電率は約１０と比較的大きく、多層配線基板としての信号伝搬がまだ十分速くない。その上、上記高融点金属の抵抗は比較的大きい。

【０００５】
そこで、上記問題点を解決するために、特公平２－４９５５０号公報では、２０重量％以上、５０重量％未満のアルミナと、１０重量％以上、６０重量％未満の石英ガラスと、２０重量％以上、４０重量％未満の非結晶化ガラスまたは結晶化ガラスとからなる混合物を含むガラスセラミック層と銅導体層とを有すること、および熱解重合型樹脂を含むバインダを使用することを特徴とする多層セラミック配線基板およびその製造方法が提案されている。また、例えば、特公平２－４９５５０号公報や、特公平１－５０１２０号公報には、電気抵抗が低い銅を導体材料と誘電率の低いガラスセラミックと組み合わせたガラス／銅配線基板を使用することにより、半導体素子を搭載するのに必要な高速の信号伝送を実現する技術が記載されている。

【０００６】
【発明が解決しようとする課題】
グリーンシートは、セラミック粉末と有機バインダと該バインダの溶剤とボールミル混合して調製されるスラリを、シート状に成形することにより作られる。

【０００７】
有機バインダとしては、ポリビニルブチラール樹脂、熱解重合型アクリル樹脂等が一般に使用される。そこで、その溶剤として、従来より、アルコール系、ケトン系、あるいは、トリクロロエチレン等の塩素系の有機溶剤が用いられている。

【０００８】
しかしながら、アルコール系やケトン系の溶剤は可燃性であり、さらに、人体に対する毒性があるものもあり、安全性に問題がある。また、塩素系の溶剤は、これらの問題のほか、環境に対する悪影響が懸念される。従って、安全衛生上の観点では、これらの有機溶剤ではなく、水または水を主成分とする溶剤を用いることが望ましい。

【０００９】
このため、水を溶剤とする有機バインダ材料が開発されてきている。例えば、セラミック成形用のバインダとして水溶性ポリアクリル酸エステルまたは水溶性ポリメタクリル酸エステルを用いる技術（特公平１－５３２３３号公報、特公平１－４４６６８号公報）や、界面活性剤を用いてビニル単量体を乳化重合して得られたエマルジョン系バインダにアクリル酸またはメタクリル酸を加え、アンモニアで中和したものを用いる技術（特開昭６０－１８０９５５号公報、特開昭６０－１８０９５６号公報）等が提案されている。

【００１０】
しかし、水を溶剤とする有機バインダ材料は、一般に親水性官能基が付加されているため

、有機溶剤を用いる有機バインダ材料よりも熱分解性が悪く、脱バインダが困難であるという問題を有する。

【００１１】

有機バインダの焼尽（脱バインダ）は、有機樹脂のカーボンへの分解過程とカーボンの酸化過程からなると言える。前者の過程は約２００～４００℃の温度で、後者の過程はおおよそ７００℃以上の温度で起きる。特に後者の過程は、

$C + 2H_2O \rightarrow CO_2 + 2H_2$

と表される反応であり、高温であるほど反応が進みやすい。従って、有機バインダの焼尽をできるだけ高温で行う方が、短時間で脱バインダでき、生産性がよい。特に、導体材料に酸化されやすい銅を用いるためには、脱バインダ工程（グリーンシート調製用有機バインダを焼尽する工程）は、銅が酸化しない雰囲気（水蒸気、窒素、水素ガスなどの雰囲気）で行なうことが好ましいが、このような非酸化性雰囲気中で脱バインダを行なうと、熱分解後のバインダ残渣物がカーボンとなるため、このカーボンを、水蒸気中との熱力学的な反応によって、ＣＯまたはCO_2として除去するためには、非常に長時間を要することから、脱バインダ工程は高温で行なうことが望ましいと考えられる。

【００１２】

また、有機バインダの焼尽の後、ガラスセラミックスは緻密化のための熱処理、すなわち、焼結が行われる。多層セラミック配線基板の生産性向上のためには、それらの熱処理が短時間に行われる必要がある。

【００１３】

しかし、脱バインダ工程の熱処理の間に基板材料であるガラスセラミックスの焼結が過度に進行し、有機樹脂の残渣やカーボンがシート内に閉じ込められてしまうと、閉じ込められたカーボンが酸化して生じるガスによるボイドの発生や、誘電率の増大の原因となり、さらに、得られるガラスセラミックスの絶縁抵抗が低下したり、ガラスセラミックスがその後の熱処理で十分に緻密化しないため十分な強度が得られないなどの問題があるため、好ましくない。一般に、基板中に残存するカーボン量としては、２００ｐｐｍ以下が好ましい。

【００１４】

そこで、脱バインダ工程の温度を高くするためには、軟化点の高いガラスを用いる必要がある。しかしながら、融点が１０８３℃である銅と同時に焼結するものを用いなくてはならないことから、ガラス材料は、１０００℃付近で焼結可能なものに限られる。従って、バインダ除去の温度を８００℃以上にすることは困難である。

【００１５】

また、有機樹脂の残渣やカーボンをシート内に閉じ込めないようにするには、基板材料であるガラスセラミックスとして、有機バインダの焼尽のための熱処理の間、過度に焼結が進行しないものを用いることが好ましい。上述のように、水を溶剤とする有機バインダ材料は、有機溶剤を用いる有機バインダ材料よりも熱分解しにくく、脱バインダの速度が遅い。そのため、水を溶剤とする有機バインダ材料を用いるためには、それに適した基板材料のガラスセラミックスが必要である。

【００１６】

また、上記のシリコン半導体集積回路素子搭載用多層セラミック配線基板の性能向上と信頼性向上を図るために、基板材料のセラミックスには、導体として低抵抗金属の銅を使用できるように銅が溶融する温度の１０８３℃よりも低い１０５０℃以下（望ましくは１０００℃付近）で焼結すること、比誘電率が小さいこと、熱膨張係数がシリコンの熱膨張係数（3.0×10^{-6}／℃）と整合すること、および、大きな曲げ強度を有することが要求される。これらの特性を満たすセラミック材料としては、硼珪酸ガラス・フィラー系が挙げられる。

【００１７】

しかし、硼珪酸ガラス・フィラー系では、グリーンシートに調製した際の硼珪酸ガラスの耐水性が問題となる。硼珪酸ガラスの耐水性が悪いと、含有される酸化硼素が水に溶出し

やすく、高湿度雰囲気の下で、ガラス表面に硼酸結晶が析出してしまう。また、硼珪酸ガラスには、熱処理によりクリストバライト結晶の析出しやすいものがある。クリストバライト結晶は約２３０℃で異常に大きな体積変化を伴う結晶相の転移が生じるので、基板の割れの原因となり、その析出は好ましくない。

【００１８】

さらに、従来技術では、十分な高密度配線を行なうことができないという問題があった。

【００１９】

配線密度の目安として、グリーンシートにあける貫通孔の間隔（スルーホールピッチ）がある。このピッチの限界、すなわち配線密度の限界は、明けた貫通孔の位置精度で決まり、この位置精度は、引張り強度や剪断強度等のグリーンシートの機械的特性で決まる。従って、配線密度を高くするためには、従来技術より機械的特性の優れたグリーンシートが必要となる。そのためには、機械的特性の優れたグリーンシートを得ることのできる材料とグリーンシート成形プロセスとの開発が必要である。

【００２０】

また、従来の焼結技術では、セラミック粉末原料の粒径や組成ばらつき、グリーンシート密度ばらつき、セラミック材料と銅導体との焼結収縮カーブのミスマッチ及び銅導体のパターン密度、積層圧着工程での積層体密度ばらつき、焼成工程での雰囲気および温度ばらつき等、原材料やプロセスに起因する焼結収縮率ばらつきがあるため、焼結した基板の寸法精度も十分ではなく、これもまた高密度配線を妨げていた。また、薄膜配線基板を搭載するためにも、高い寸法精度が要求される。しかし、焼結体の寸法精度を大幅に改善するためには、従来とは異なる新しい配線基板製造プロセスを開発する必要がある。

【００２１】

そこで、本発明は、上述した諸問題を解決し、溶剤として水系溶剤を用い、脱バインダが容易で、高密度配線が可能であり、寸法精度の高い配線基板およびその製造方法と、該配線基板を製造するための材料とを提供することを目的とする。

【００２２】

【課題を解決するための手段】

上記のような配線基板は、高軟化点で耐水性が良好な硼珪酸ガラスとセラミックフィラーとからなる基板用ガラス材料、および、熱分解性が良好で孔あけおよび印刷工程での寸法変化が小さい水系分散型バインダ樹脂を用い、寸法収縮変化がほとんど無い加圧焼結を行なうことによって得られる。

【００２３】

本発明では、上記目的を達成するために、下記（１）～（４）の工程をこの順で有する配線基板の製造方法と、この方法に用いられる材料、この方法により作製される配線基板と、該配線基板を備える電子回路装置、電子計算機用モジュール、および電子計算機とが提供される。

【００２４】

（１）非晶質ガラスと、フィラーと、有機バインダと、溶剤とを混合してスラリーを調製するスラリー調製工程

（２）スラリーをシート状に加工して、グリーンシートを調製するグリーンシート調製工程

（３）グリーンシートに、導体によりビアホールおよび／または配線を形成する導体形成工程

（４）グリーンシートを、必要に応じて積層する工程

（５）積層体を７００～８８０℃に加熱して脱バインダする工程

（６）積層体を９００～１０５０℃に加熱して焼結する加熱工程

ただし、上記の非晶質ガラスは、SiO_2、B_2O_3、R_2O（Ｒはアルカリ金属を表す）と不可避的不純物とを含み、図１に示す$SiO_2-B_2O_3-R_2O$系三角組成図において、第１の組成を示す点および第３の組成を示す点、第３の組成を示す点および第１０の組成を示す点、第１０の組成を示す点および第１１の組成を示す点、第１１の組成を示す点およ

び第４の組成を示す点、第４の組成を示す点および上記第１の組成を示す点、をそれぞれ結ぶ線により囲まれる領域内（線上含む）の点の示す組成を有する。ただし、図１において、各組成を示す点は小円により表されており、小円内の数字は、該小円の表す組成の番号を示している。

【００２５】

なお、三角組成図とは、三角座標により３成分系の組成物を表現する図である。三角組成図において、正三角形の頂点（Ａ、Ｂ、Ｃとする）は、それぞれ３成分のうちのいずれかの純物質を表し、正三角形内（辺上を含む）の点は、３成分のうちの少なくとも１種からなる組成物を表す。該組成物に含まれる各成分の比率は、その組成物を示す点（Ｐとする）から、各頂点の対辺へそれぞれ下した垂線の長さの比率により表される。すなわち、頂点Ａの対辺をａとすると、頂点Ａの示す成分の比率は、点Ｐから辺ａへ下された垂線（ｈとする）の長さにより表される。この線分ｈの長さ（すなわち、頂点Ａの示す成分の組成比）は、点Ｐから、線分ｈに直行する線を引き、この線と頂点Ａの示す成分の百分率（または分率）目盛の付された辺との交点を求め、該交点の目盛を読み取ることにより知ることができる。

【００２６】

また、非晶質ガラスの各成分は、それぞれ酸化物として換算される。すなわち、SiO_2成分の量とは、非晶質ガラス中に含まれる珪素の量を、酸化珪素（SiO_2）に換算して求められる量であり、B_2O_3成分の量とは、非晶質ガラス中に含まれる硼素の量を、酸化硼素（B_2O_3）に換算して求められる量であり、R_2O成分の量とは、非晶質ガラス中に含まれるアルカリ金属の量を、アルカリ金属酸化物（R_2O）に換算して求められる量であり、Al_2O_3成分の量とは、非晶質ガラス中に含まれるアルミニウムの量を、酸化アルミニウム（Al_2O_3）に換算して求められる量であり、ＺｎＯ成分の量とは、非晶質ガラス中に含まれる亜鉛の量を、酸化亜鉛（ＺｎＯ）に換算して求められる量である。

【００２７】

各組成の組成比は、SiO_2成分、B_2O_3成分、およびR_2O成分の総重量を１００％としたとき、第１の組成は、SiO_2成分が８８重量％、B_2O_3成分が１２重量％であり、第３の組成は、SiO_2成分が８２重量％、B_2O_3成分が１８重量％であり、第１０の組成は、SiO_2成分が８４重量％、B_2O_3成分が１０重量％、R_2O成分が６重量％であり、第１１の組成は、SiO_2成分が９０重量％、B_2O_3成分が５重量％、R_2O成分が５重量％であり、第４の組成は、SiO_2成分が８９重量％、B_2O_3成分が１０重量％、R_2O成分が１重量％である。

【００２８】

なお、上記組成範囲のうち、上記第４の組成を示す点および第５の組成を示す点、第５の組成を示す点および第９の組成を示す点、第９の組成を示す点および上記第１０の組成を示す点、上記第１０の組成を示す点および上記第１１の組成を示す点、上記第１１の組成を示す点および上記第４の組成を示す点、をそれぞれ結ぶ線により囲まれる領域内（線上含む）の点の示す組成が、さらに好ましい。

【００２９】

ここで、第５の組成は、SiO_2成分が８７重量％、B_2O_3成分が１１．５重量％、R_2O成分が１．５重量％である組成を示し、第９の組成は、SiO_2成分が８４．７重量％、B_2O_3成分が１０．８重量％、R_2O成分が４．５重量％である組成を示す。

【００３０】

また、ガラスの耐水性の点から、Ｒはカリウムであることが望ましい。また、上述の組成におけるR_2Oを、R_2OとR_2Oのモル量の９０％以下のAl_2O_3とに置き換えた組成のガラスが、より好ましく、さらに、非晶質ガラス全体に対して１～４重量％のＺｎＯ成分を含んでいてもよい。

【００３１】

なお、非晶質ガラスとフィラーの量は、非晶質ガラスおよびフィラーの前体積を１００体積％としたとき、非晶質ガラスが６０～９５％であり、フィラーが４０～５体積％である

ことが好ましい。
【００３２】
また、本発明では、有機バインダとして、水溶性高分子を重合用分散安定剤として用いた懸濁重合によって得られるセラミック成形用有機バインダ、すなわち、
（Ａ）少なくとも一種類以上のアクリル酸エステルまたはメタクリル酸エステル（ただし、炭素数が１～１８個のアルキル基、炭素数が１～１２個の環状アルキル基またはアリール基のエステル）１００重量部と、
（Ｂ）水溶性高分子（重合用分散安定剤）１～９．５重量部とを、
水または水と水溶性有機溶剤との混合液に溶解し、重合開始剤存在下で（Ａ）のエステル化合物を懸濁（共）重合させて得られる高分子化合物を用いる。
【００３３】
さらに、本発明では、（６）の工程において、成形体（積層する場合は積層体、積層しない場合はグリーンシート）を焼結する際に、厚さ方向に加圧することが望ましい。このようにすれば、表面に発生する摩擦力または拘束力により、成形体の厚さ方向に垂直な方向の収縮を抑制、制御することができるからである。
【００３４】
【作用】
本発明の配線基板の製造方法の一例を図２に模式的に示す。図２に示した方法は、
（１）まず、図２（ａ）に示すように、ボールミル装置１に非晶質ガラスとフィラーとからなるガラスセラミック組成物、有機バインダ、および溶剤を入れ、混合してスラリーにするスラリー化工程と、
（２）図２（ｂ）に示すように、スラリー２をキャスティングマシーン３によりシート状に加工して、グリーンシート４にするグリーンシート形成工程と、
（３）図２（ｃ）に示すように、得られたグリーンシート４にポンチ５を用いて貫通孔５１をあける孔あけ工程と、
（４）図２（ｄ）に示すように、グリーンシート４上に載せた導体ペースト７をスキージ６によりグリーンシート４の貫通孔５１に充填してビアホール５３を形成し、さらにグリーンシート表層部に導体ペーストを印刷して配線５２を形成する印刷工程と、
（５）図２（ｅ）に示すように、図２（ｄ）で得られたビアホール５３および配線５２を備えるグリーンシート４を複数枚積層して接着し、グリーンシート積層体４１を形成する積層工程と、
（６）図２（ｆ）に示すように、得られたグリーンシート積層体４１を、加熱炉８により７００～８８０℃に加熱して脱バインダする脱バインダ工程と、さらに９００～１０５０℃で焼結する焼結工程とを、
この順で有する。以下に、その詳細について述べる。
【００３５】
＜ガラスセラミック組成物＞
ａ．軟化温度
本発明のグリーンシートを構成する（すなわち、スラリー化工程で用いられる）ガラスセラミック組成物はガラス粒子とフィラー粒子とからなる複合体であり、このような複合体は、熱処理による加熱によってガラスが軟化流動し、ガラス粒子接触部が増大してガラス粒子の表面積の減少が生じる、すなわち、ガラス粒子どうしの焼結が生じる。ガラスが軟化流動し、焼結が生じる温度は、ガラスの軟化温度、ガラス粒子と混合されるフィラーの量、ガラス粒子およびフィラー粒子の粒径等に依存する。一般に、フィラーはガラス粒子どうしの焼結を阻害するので、フィラーの量が多いほどガラス粒子の焼結は起こり難くなる。
【００３６】
上述したように、グリーンシートに含まれる有機バインダの焼尽のための熱処理の間、ガラス粒子の焼結は起こり難い方が好ましい。そのために、フィラーの量を多くすることが考えられる。しかし、フィラーの量が多くなり過ぎると、ガラスの緻密化焼結が起き難く

なる。緻密化焼結するための熱処理温度は、銅の融点１０８３℃よりも少し低い１０５０℃以下に制限されるので、緻密化焼結し難い場合には長時間熱処理すること、加圧をしながら熱処理することなどによって、できるだけ緻密化することを試みたが、そのような熱処理は多層セラミック配線基板の生産性の点であまり好ましくない。

【００３７】

多層セラミック配線基板用ガラスセラミックスのガラス組成物としては、基板特性として要求される熱膨張係数、比誘電率の点から、パイレックスガラス（コーニング社商品名）を代表とする硼珪酸ガラスが用いられる。パイレックスガラスの組成は、SiO_2：８１重量％、B_2O_3：１２重量％、Na_2O：４重量％、Al_2O_3：３重量％であり、軟化温度は８２１℃で、市販の硼珪酸ガラスの中では、最も軟化温度の高いもののひとつである。パイレックスガラス以上の軟化温度を有する硼珪酸ガラスは、製造コストが高く、量産されている市販ガラスとして入手することは困難である。

【００３８】

本発明者らはパイレックスガラスを用いて多層セラミック基板の製造を検討したところ、軟化温度が低すぎるため、フィラー量が少ないと、脱バインダ工程（７００～８８０℃の非酸化性雰囲中の熱処理）においてガラス粒子の焼結が進行してしまい、有機バインダ残渣がガラス中に取り込まれ、完全な脱バインダが困難であった。一方、フィラー量を５０体積％以上と多くした場合、ガラス粒子の焼結が抑制され、脱バインダは容易になった。しかし、このようにフィラー量を多くすると、緻密化焼結し難く、１０５０℃の高温焼成でも、１０時間以上の長時間を要した。

【００３９】

軟化点より低い温度で脱バインダを行なえば、ガラス中へのカーボンの取り込みは起こらない。一方、銅（融点１０８３℃）との同時焼結を行なう必要があるため、１０００℃付近で焼結するガラスを用いる必要がある。

【００４０】

そこで、本発明では、軟化点が８５０℃～１１００℃のガラスを用いる。軟化温度が８５０℃以上であれば、脱バインダ時の加熱による焼結の進行はほとんど起こらず、軟化温度が１１００℃よりも低ければ、１０５０℃以下の焼成で緻密化焼結することができるからである。

【００４１】

なお、軟化点が８００℃未満のガラスを用いても、添加するフィラー量を増やせば焼結による収縮カーブが緩やかとなり緻密化温度が高くなる。そこで、フィラー量を増やせば、緻密化温度を８００℃より高くすることができるので、緻密化前に、８００℃で脱バインダを行なうことができるように見える。しかし、個々のガラス粒子に着眼すると、脱バインダ温度がガラスの軟化点以上であるため、脱バインダ工程においてすでにガラス粒子が軟化し、内部にカーボンを閉じ込めてしまう。従って、ガラスの軟化点は、カーボン除去反応温度以上であることが好ましい。

【００４２】

ｂ．耐水性

水を主成分とする溶剤を用いて、グリーンシート作製用スラリーを得るためには、ボールミル混合時にガラスの成分が溶出しない、すなわち、耐水性の高いガラスを用いる必要がある。

【００４３】

硼珪酸ガラス成分中の酸化ホウ素成分（B_2O_3）は、水に溶出しやすい。ボールミル混合時にこの成分が溶剤に溶出すると、ガラス成分中のB_2O_3成分が減少するだけでなく、グリーンシート成形後に、数十μｍ位の大きさのホウ酸結晶として、溶出したB_2O_3成分がグリーンシート表面に析出する。この析出したホウ酸結晶は配線幅が１００μｍ以下の微細配線を形成する際に、断線や短絡の原因となる。同様に、グリーンシートを保管する際にも耐水性の悪いガラス材料を用いると、吸湿によってホウ酸結晶が析出する。また、硼珪酸ガラスの耐水性が悪いと、焼結体となってもB_2O_3が水に溶出しやすく、高湿度雰囲

気下において表面にホウ酸結晶が析出し、基板の強度を劣化させる。以上の理由から、本発明で用いられるガラスは、耐水性が良い必要がある。

【００４４】

耐水性の目安としては、ガラスを純水中に９０℃で８時間浸漬したときの、ガラスの表面積当たりのB_2O_3の溶出量を用いることができる。この溶出量は、１．９ｍｇ／m^2（上記パイレックスガラスの溶出量）以下が望ましく、１．５ｍｇ／m^2以下がさらに望ましい。本発明の非晶質ガラスは、この耐水性の基準（１．９ｍｇ／m^2以下）を満たしており、特にR_2OがK_2Oであるガラスは耐水性に優れている。

【００４５】

ｃ．クリストバライト結晶析出性

市販されている硼珪酸ガラスである上述のパイレックスガラスを、１０００℃付近まで加熱すると、クリストバライト結晶が析出してくる。クリストバライト結晶は２３０℃付近での結晶相転移に伴う大きな体積変化を起こすため、クラックや基板強度低下原因となる。従って、クリストバライト結晶の析出しにくいガラスを用いることが好ましい。

【００４６】

ｄ．比誘電率および熱膨張係数

さらに、本発明の硼珪酸ガラスは、比誘電率が小さく、多層配線基板としての信号伝搬を速くする作用がある。また、本発明の硼珪酸ガラスは、熱膨張係数が小さく、添加するフィラーと組み合わせて熱膨張係数をシリコンと整合させることができる。、本発明のセラミック組成物は、上記熱処理によっても硼珪酸ガラスからクリストバライト結晶が析出せず、好ましい。なお、シリコンの熱膨張係数は３．０×10^{-6}／℃であるから、セラミック焼結体の熱膨張係数は２．０～４．０×10^{-6}／℃であることが望ましい。

【００４７】

ｅ．本発明の非晶質ガラス

本発明の非晶質ガラスの組成は、上述した軟化温度、耐水性、熱膨張係数、クリストバライト結晶析出性、および比誘電率等の特性に優れるガラス材料という観点から、探索実験により求められたものである。

【００４８】

本発明の非晶質ガラスの第一組成域は、図１に示すSiO_2－B_2O_3－R_2O系三角組成図において、重量％でSiO_2が８８、B_2O_3が１２である組成を第１の組成、SiO_2が８２、B_2O_3が１８である組成を第３の組成、SiO_2が８４、B_2O_3が１０、R_2Oが６である組成を第１０の組成、SiO_2が９０、B_2O_3が５、R_2Oが５である組成を第１１の組成、SiO_2が８９、B_2O_3が１０、R_2Oが１である組成を第４の組成とした場合、第１の組成を示す点および第３の組成を示す点を結ぶ直線と、第３の組成を示す点および第１０の組成を示す点を結ぶ直線と、第１０の組成を示す点および第１１の組成を示す点を結ぶ直線と、第１１の組成を示す点および第４の組成を示す点を結ぶ直線と、第４の組成を示す点および第１の組成を示す点を結ぶ直線とで囲まれた範囲（線上の組成も含む）の示す組成域である。

【００４９】

この組成域に含まれる組成のガラスは軟化温度が８５０～１１００℃であり、耐水性は実用レベルであり、熱膨張係数もフィラーの添加によりシリコンに整合させることができるものである。この範囲の非晶質ガラスを用いて調製したグリーンシートにおいては、脱バインダ工程（７００～８８０℃の非酸化性雰囲気中の熱処理）ではガラス粒子の焼結が進行し難く、上述したように熱分解の起こりにくい水溶性有機バインダを用いた場合でも、有機バインダ残渣がガラス中に取り込まれることなく脱バインダを容易に行うことができた。しかも、本発明のセラミック組成物により調製したグリーンシートは、緻密化焼結の工程において、１０５０℃以下の短時間（２時間）焼成でも、緻密化焼結することができる。

【００５０】

ここで、SiO_2およびB_2O_3はガラスの網目構造を形成し、SiO_2成分量の増大は軟化

温度を高め、耐水性を高める作用をもち、B_2O_3成分量の増大は軟化温度を低下し、耐水性を低める作用をもつ。R_2Oは網目修飾成分として、軟化温度を低下し、一部の組成領域でB_2O_3の耐水性を高める作用をもつ。本発明の非晶質ガラスよりもSiO_2が多い組成のものは、軟化温度が高くなり過ぎて１０００℃付近での焼結が困難となり、また、B_2O_3が多い組成のものは、B_2O_3の溶出量が大きすぎるため耐水性の点で劣り、R_2Oが多い組成のものは、熱膨張係数が高すぎるためＬＳＩチップとの熱膨張係数差が大きくなるため、本発明の目的に適さない。

【００５１】

第１の組成と第４の組成と第１１の組成を結ぶ線よりSiO_2の多い側の組成を有するガラスは、軟化温度が高すぎるため、本発明の目的を達成する上では好ましくない。また、第１１の組成と第１０の組成を結ぶ線よりR_2Oの多い側の組成を有するガラスは、熱膨張係数が高すぎるため、本発明の目的を達成する上では好ましくない。第３の組成と第１０の組成を結ぶ線よりSiO_2の少ない組成はB_2O_3溶出量が大きすぎるため、本発明の目的を達成する上では好ましくない。

【００５２】

本発明の非晶質ガラスの第二の組成域は、図１に示す$SiO_2-B_2O_3-R_2O$系三角組成図において、重量％でSiO_2が８９、B_2O_3が１０、R_2Oが１である組成を第４の組成、SiO_2が８７、B_2O_3が１１．５、R_2Oが１．５である組成を第５の組成、SiO_2が８４．７、B_2O_3が１０．８、R_2Oが４．５である組成を第９の組成、SiO_2が８４、B_2O_3が１０、R_2Oが６である組成を第１０の組成、SiO_2が９０、B_2O_3が５、R_2Oが５である組成を第１１の組成とした場合、第４の組成を示す点および第５の組成を示す点を結ぶ直線と、第５の組成を示す点および第９の組成を示す点を結ぶ直線と、第９の組成を示す点および第１０の組成を示す点を結ぶ直線と、第１０の組成を示す点および第１１の組成を示す点を結ぶ直線と、第１１の組成を示す点および第４の組成を示す点を結ぶ直線とで囲まれた範囲（線上の組成も含む）の示す組成域である。

【００５３】

この組成域に含まれる組成のガラスは、上述した第一の組成域に含まれるガラスの中で、特に耐水性が高い（すなわちB_2O_3溶出量が少ない）。この第２の組成域に含まれる組成のガラスや、そのガラスを用いて製作されたグリーンシートは保管や取扱い雰囲気の制限がほとんどなくなり、より好ましい。

【００５４】

上述の組成範囲のなかでも、$SiO_2$８７．０重量％－$B_2O_3$９．０重量％－K_2O４．０重量％（第８の組成）またはその近傍の組成のガラスは、軟化温度、耐熱性、耐水性に優れ、最も好ましい。

【００５５】

本発明の非晶質ガラスの第三の組成域は、上記第二組成域に含まれる組成のガラスのR_2O成分を、R_2Oと、該R_2Oのモル量の９０％以下のモル量のAl_2O_3とに置き換えて得られる組成の範囲である。この組成のガラスは、Al_2O_3の存在により、熱処理によるガラスからのクリストバライト結晶の析出も抑制されるため、極めて好ましい。さらに、Al_2O_3の添加には、B_2O_3の溶出量を少なくするという効果もある。ただし、Al_2O_3の添加がガラスに含まれるR_2Oのモル量の９０％を超えると、ガラスの軟化温度が１１００℃を超えてしまうため、好ましくない。ここでＲは、Ｎａ、Ｋ等のアルカリ金属を示し、耐水性の点から、Ｋが最も好ましい。

【００５６】

Al_2O_3を添加することにより、クリストバライト結晶の析出が抑制されるメカニズムは、つぎのようなものであると考えられる。

【００５７】

$SiO_2-B_2O_3-R_2O$系ガラスの構造は、図７（ａ）に示すようにＳｉ原子の酸素４配位体とＢ原子の酸素３配位体およびＢ原子の酸素４配位体の無秩序網目構造である。ここで、Ｂ原子の酸素４配位体は電荷補償のため、Ｒイオンを引き付けている。この３成分系

にAl_2O_3が添加された場合、図７（ｂ）に示すようにＢ原子の酸素４配位体はＢ原子の酸素３配位体になり、Ｒイオンを引き付けたＡｌ原子の酸素４配位体が形成される。B_2O_3溶出はＢ原子の酸素３配位体の方が、Ｂ原子の酸素４配位体よりも起きやすい。Al_2O_3添加を添加すると、B_2O_3溶出量のわずかな増加が見られるが、これは、Ｂ原子の酸素４配位体がＢ原子の酸素３配位体に変わるためと考えられる。

【００５８】

つぎに、Al_2O_3を添加しないガラスと、Al_2O_3を添加したガラスとを、それぞれ熱処理した場合について考える。上述のように、Al_2O_3を添加しないガラスでは、Ｂ原子は酸素４配位体となっている。図８（ａ）に示すように、Ｂ原子の酸素４配位体は、Ｂ－Ｏ結合力およびＲイオンを引き付ける力が比較的小さいため、高温でそれらの結合が切断され、Ｓｉの非架橋酸素が形成されやすいと考えられる。このため、高温における粘度が低下し、クリストバライト結晶が析出しやすい。一方、Al_2O_3を添加したガラスでは、Ａｌ原子が酸素４配位体となっている。図８（ｂ）に示すように、Ａｌ原子の酸素４配位体はＡｌ－Ｏ結合力およびＲイオンを引き付ける力が比較的大きいため、高温でもそれらの結合が切断されにくく、クリストバライト結晶が析出しにくいと考えられる。しかし、Al_2O_3の添加量が多過ぎると、ガラスの軟化温度が高くなり過ぎるという副作用を生じるため好ましくない。

【００５９】

なお、第８の組成ではそのK_2Oのモル量の８０％以上のモル量のAl_2O_3を添加すれば、クリストバライト結晶の析出をほぼ完全に抑制できるが、Al_2O_3添加量をK_2Oのモル量の５０％以上とすれば、クリストバライト結晶析出量を１／５以下とすることができる。Al_2O_3の添加量をK_2Oのモル量の８０％としたとき、軟化温度は１０２０℃となり、Al_2O_3添加量をこれより多くすれば、軟化温度も１０２０℃より高くなある。軟化温度は、１０００℃付近が最も好ましいため、Al_2O_3添加量は、K_2Oのモル量の８０％以下が特によいと考えられる。そこで、第８の組成に対するAl_2O_3の添加量は、K_2Oのモル量の５０％以上８０％以下とすることが特に望ましく、７０％モル量またはその付近とすることが最も好ましい。

【００６０】

本発明の非晶質ガラスの第四の組成域は、上記第一～第三の組成域のガラスに、ＺｎＯを１～４重量％添加して得られるガラスの組成の範囲である。この組成のガラスはB_2O_3溶出量が少なく、比誘電率が低いという特徴があり、好ましい。ＺｎＯの添加量が１重量％より少ない場合には、添加の効果が得られず、ＺｎＯの添加量が４重量％より多い場合には、熱処理によるガラスからの結晶析出が起こり易く好ましくない。

【００６１】

以上に述べた組成のガラスは、例えば、無水ケイ酸（SiO_2）、ホウ酸（H_3BO_3）、およびアルカリ金属の炭酸塩（R_2CO_3）と、必要に応じて、アルミナ（Al_2O_3）および／または酸化亜鉛（ＺｎＯ）を所定の組成比になるように秤量、続いてボールミル混合後この混合粉末をルツボに入れ、加熱炉にて混合粉末が十分溶融する温度で加熱した後急冷して非晶質ガラス塊を作製し、所定の粒径となるように粉砕することによって得られる。

【００６２】

ｆ．フィラー

ところで、セラミック配線基板としてのセラミック材料としては、硼珪酸ガラスを単独で使用せずに、機械的強度の向上、クリストバライト結晶析出を抑える、熱膨張係数のＬＳＩチップとの整合、及び銅との同時焼結のための収縮整合を目的としてフィラーを添加した、ガラス／フィラー複合体とした材料が用いられる。

【００６３】

このようなフィラーとしては、ムライト、アルミナ、コージェライト、石英を単独またはこれらを組み合わせた混合物が用いられ、フィラーを添加する量としては上記目的、比誘電率、及び焼結でのセラミック材料の緻密化・変形・寸法精度等を材料構成及びプロセス

を考慮して調整される。
【００６４】
本発明のガラスに添加するフィラーは、焼結後、ガラスマトリックス相中に分散する粒子として構成され、
（ａ）ガラスセラミック複合体の機械的強度を向上させる作用、
（ｂ）ガラスセラミック複合体の熱膨張係数をシリコンと整合させる作用、
（ｃ）硼珪酸ガラスからの熱処理によるクリストバライト結晶析出を抑える作用、
等の作用をもつ。上記したように、ガラスセラミック複合体としては、高強度、低比誘電率が好ましい。フィラーとしてのアルミナは、特に上記（ａ）、（ｃ）の作用、ムライトおよびコージェライトは上記（ａ）、（ｂ）、および（ｃ）の作用、石英ガラスは特に低比誘電率化の作用を有する。本発明では、これらそれぞれの単独体、あるいは、これらから選ばれる複数種を組合せた混合物が、ガラスにフィラーとして添加される。
【００６５】
つぎに、セラミック組成物に含まれるフィラーの量と、加圧焼成との関係について説明する。なお、フィラー量と、焼成時に印加した圧力と、焼結温度および相対密度（ボイド０％の時相対密度は１００％）との関係を、図２１に模式的に示す。
【００６６】
本発明では、焼成時に加圧することが望ましい。フィラー添加量は、加圧焼成時の最高温度保持時に、ガラス材料が緻密化可能な範囲とする。焼成時に印加する圧力を大きく設定すれば、添加できるフィラー量は増える。しかし、フィラー量が増えると、緻密化した時のガラスとフィラーからなるセラミック中のボイドが多くなってしまう。セラミック体のボイドは５％以下であることが望ましく、このようにするためには、ガラスおよびフィラーの粒径にも依存するが、ガラス５０～１００体積％に対してフィラーを５０～０体積％とすることが好ましい。フィラー添加量が５０体積％を超えると、ガラス／銅配線基板を作製できる範囲内で（すなわち、基板を破壊しない範囲内で）圧力および温度を最高にしても、フィラーの周りを取り囲むためのガラスの量が不十分なため、ガラスセラミック中のボイドを５％以下とすることができない。なお、焼結を１０５０℃以下の温度で行なうためには、フィラーを、セラミック全体の４０体積％以下にすることが望ましい。
【００６７】
＜バインダ材料＞
グリーンシート用のバインダとしては、バインダ除去時間が短くてすむよう、熱分解後のバインダ残渣物である残留カーボン量が少ない、水系材料を用いることが望ましい。また、バインダ材料は、グリーンシートの機械的性質、すなわち、該グリーンシートに微小な貫通孔を多数明ける際の歪量を支配することから、高位置精度な孔あけを実現するためには、この歪量が小さくなるようなバインダ材料が良い。このような観点から、バインダには、熱分解が解重合型で、熱分解時のカーボン残渣量が少なく、貫通孔を明ける際の歪が小さい材料を用いることが望ましい。
【００６８】
このようなバインダ材料として、水溶性高分子を重合用分散安定剤として用いた懸濁重合によって得られる重合体を用いることが好ましい。。
【００６９】
詳しくは、
（Ａ）下記一般式（化１）で表されるアクリル酸エステルおよびメタクリル酸エステルのうちの少なくとも一種：１００重量部と、
【００７０】
【化１】

$CH_2=CHCO_2R^1$

または …（化１）

$CH_3=C(CH_3)COOR^1$

【００７１】
（ただし、R^1は、炭素数が１～１８個のアルキル基、炭素数が１～１８個の環状アルキル基または炭素数が５～１８個のアリール基）：１００重量部と、
（Ｂ）分散安定剤：１～９．５重量部とを、
水または水と水溶性有機溶剤との混合液に溶解し、重合開始剤存在下で（Ａ）成分を懸濁（共）重合させて得られるセラミック成形用有機バインダが好ましい。本発明で用いる有機バインダは、水溶性ではなく、水系分散型粒子であることから吸湿性が低いため、これを用いて得られるグリーンシートの機械的特性および寸法安定性が良い。
【００７２】
なお、有機バインダはバインダ調製用溶剤に分散した状態で用いられるが、その状態の固形分濃度は、濃度が高いと粒径が大きくなり、濃度が低いとグリーンシート作製時の添加量の調節や乾燥等の作業性が低下することから、２０～５０重量％が好ましく、３０重量％程度がさらに好ましい。
【００７３】
ａ．モノマ
（Ａ）成分は、セラミック成形用有機バインダの主成分であり、メタクリル酸エステルは、熱分解性が良好なため特に好ましい。メタクリル酸エステルの中でも、特に、メタクリル酸ｎ－ブチル（以下、ｎ－ＢＭＡと略す）、メタクリル酸エチル、メタクリル酸ｎ－プロピル、メタクリル酸イソプロピル、メタクリル酸ｎ－オクチル、メタクリル酸メチル、アクリル酸ｎ－ブチル（以下、ｎ－ＢＡＡと略す）等が良い。さらに、これらの中でも、熱分解性およびグリーンシート孔明け時の孔位置精度の点から、特にメタクリル酸ｎ－ブチルが良好である。
【００７４】
ｂ．分散安定剤
また（Ｂ）成分は、（Ａ）成分を重合開始剤の存在下で重合する際の、重合用分散安定剤として用いられる水溶性高分子であり、具体的には、ポリエチレンオキシド（以下、ＰＥＯと略す）、ポリビニル－２－ピロリドン、ポリビニル－２－ピロリドン共重合体、ポリ（２－オキサゾリン）等が使用される。これらのなかで、熱分解性の点からポリエチレンオキシドが特に好ましい。
【００７５】
本発明では、水系分散型粒子のバインダを用いる。すなわち、セラミック粉末とのボールミル混合時には、バインダは粒子状であり、乾燥工程でこの粒子状のバインダを溶融させる。溶融したバインダは、個々のセラミック粒子を接着し、粒子状のバインダが占めていた部分が空間となる。したがって、セラミック成形用バインダとしてのバインダポリマの平均粒径としては、用いられるセラミック粒子の大きさと同等もしくはそれ以下の、５μｍ以下、好ましくは３μｍ以下が良い。
【００７６】
このような粒子径を得るためには、粘度平均分子量が１０～１００万の水溶性高分子（特にポリエチレンオキシド）を重合用分散安定剤として使用することが好ましく、粘度平均分子量が１０～５０万であればさらに好ましい。また、この水溶性高分子（特にポリエチレンオキシド）の量は、（Ａ）成分のモノマ１００重量部に対して、１～９．５重量部が良く、６～８重量部がさらに好ましい。（Ａ）成分のモノマ１００重量部に対して水溶性高分子である（Ｂ）成分の量を１重量部未満とすると、（Ａ）成分が分散せず、また、９．５重量部を超える場合には、熱分解性の点から好ましくない。

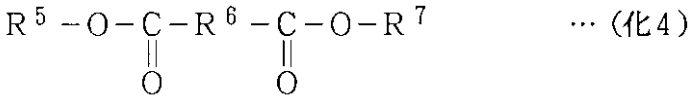
【００７７】
ｃ．重合開始剤
また、重合開始剤としては、過硫酸アンモニウム（以下、ＡＰＳと略す）等の過硫酸塩、過酸化物、アゾ化合物等を用いることができ、特に制限されないが、モノマ１００重量部に対して０．５重量部以下とするこが望ましい。
【００７８】
ｄ．溶剤
バインダ調製用溶剤としては、水、または、水と一種以上の水溶性有機溶剤との混合液が用いられる。水溶性溶剤としては、例えば、下記一般式（化２）で表されるアルコール、および、下記一般式（化３）で表されるエチレングリコール誘導体のうちのいずれかを用いることができ、具体的には、メタノール、エタノール、プロパノール、イソプロパノール（以下、ＩＰＡと略す）等のアルコールや、エチレングリコールメチルエーテル等のエチレングリコール誘導体等を用いることができる。これらの有機溶剤のうち、特にＩＰＡが好ましい。
【００７９】
【化２】

$$R^2-OH \qquad \cdots(化2)$$

【００８０】
（ただし、R^2は炭素数１～１８のアルキル基または炭素数１～１８の環状アルキル基）
【００８１】
【化３】

$$R^3\left(O-\underset{\displaystyle R^4}{\underset{|}{C}}H-CH_2OH\right)_n \qquad \cdots(化3)$$

【００８２】
（ただし、R^3は、水素、炭素数１～１８のアルキル基、炭素数１～１８の環状アルキル基、または、炭素数５～１８のアリール基であり、R^4は、水素、炭素数１～６のアルキル基、炭素数１～６の環状アルキル基、または、炭素数５～６のアリール基であり、ｎは１～２０である）
また、これらの有機溶剤と水との混合比は、水を１００～５０重量％、水溶性溶剤を０～５０重量％とすることが望ましく、水を９５～５０重量％、水溶性溶剤を５～５０重量％とすることがさらに望ましい。なお、バインダ調製用溶剤量は、モノマ１００重量部に対して１００～４００重量部が好ましく、２５０重量部付近がさらに好ましい。
【００８３】
ｅ．可塑剤
グリーンシート成形用のバインダは、可塑剤を含むことが望ましい。可塑剤としては、バインダ用溶剤と相溶性が良く、水または水溶性有機溶剤と共沸せず、グリーンシート成形時の乾燥工程で揮発しにくいものが良い。そこで、可塑剤として、下記一般式（化４）により表される芳香族ジカルボン酸エステルのうちの少なくともいずれかを用いることが望ましい。
【００８４】
【化４】



…（化４）

【００８５】
（ただし、R^5は、炭素数１～１８のアルキル基、炭素数１～１８の環状アルキル基、または、炭素数５～１８のアリール基であり、R^6は、炭素数１～１８のアルキル基、炭素数１～１８の環状アルキル基、または、炭素数５～１８のアリール基である。また、R^7は炭素数５～１８の２価の芳香族基であり、特にフェニレン基が好ましい。）
この可塑剤の具体例としては、ジイソデシルフタレート（以下、ＤＩＤＰと略す）、ジブチルフタレート（以下、ＤＢＰと略す)、ジ－２－エチルヘキシルフタレート、ジイソノニルフタレート等のフタル酸エステルが挙げられ、これらのなかでもＤＩＤＰが好ましい。可塑剤の添加量は、モノマ１００重量部に対して５～１５重量部とすることが好ましく、１０重量部程度がさらに好ましい。
【００８６】
ｆ．バインダ調製方法
バインダは、例えば、以下の手順で調製することができる。まず、バインダ用溶剤に（Ｂ）成分１～９．５重量部を溶解し、得られた溶液中に、０．１５重量部程度の重合触媒を添加し、重合触媒の種類によるが、通常、４０～９０℃に加熱しながら激しく撹拌しつつ、（Ａ）成分１００重量部および可塑剤を添加して、重合（または共重合）反応を行うことによって、バインダが得られる。
【００８７】
なお、添加する（Ａ）成分量は、重合反応を円滑にするため、溶液濃度が６０重量％以下となる量とすることが望ましい。また、バインダがグリーンシートの機械的性質、すなわち、グリーンシートに微小な貫通孔を多数明ける際の歪量を決めることから、バインダ材料と同様に、可塑剤の量も、この歪量が小さくなるように定めることが、高位置精度な孔あけのために望ましい。
【００８８】
＜グリーンシート＞
本発明の非晶質ガラスとフィラーとからなるセラミック粉末と、上述したバインダと、分散剤と、スラリー用溶剤とを、ボールミル混合することにより、スラリーが得られる。このスラリーをシート状に成形し、乾燥することにより、グリーンシートが得られる。
【００８９】
ａ．スラリー用溶剤
なお、スラリー用溶剤としては、バインダ粒子の分散性の点からバインダ作製時と同様の溶剤、すなわち、水、または、水と水溶性有機溶剤との混合溶剤を用いることが望ましく、水とイソプロパノールとの混合溶剤を用いることが特に望ましい。ここで、水とイソプロパノールとの混合溶剤を用いた場合でも、グリーンシート成形時の乾燥工程において十分な空気を流すことで、容易に、空中の溶剤濃度を爆発限界以下とすることができる。
【００９０】
ｂ．バインダ量
バインダの量としては、脱バインダ性、グリーンシートの成形性、積層圧着性の点から、セラミック粉末１００重量部に対して５～２５重量部が適当である。
【００９１】
ｃ．分散剤
また、分散剤は、セラミック粉末の分散のため、添加することが望ましく、例えば、ポリアクリル酸アンモニウム塩等を用いることができ、その添加量は、セラミック粉末１００重量部に対して０．５重量部以下とすることが望ましく、０．１～０．２重量部が特に好

ましい。
【００９２】
ｄ．熱処理
先に述べたように、本発明のバインダは、粒子状態で混合されてセラミック粒子間を接着する。このとき、キャスト温度が低いと、十分な接着強度が得られない。そこで、グリーンシートの引張り強度、ヤング率等の機械的特性を向上させるために、乾燥時に、適宜熱処理を行っても良い。
【００９３】
この熱処理の温度および時間は、バインダ粒子が溶融する条件とすることが望ましく、具体的には、８０～１２０℃、３０～９０分程度とすることが望ましい。この加熱条件であれば、バインダ粒子は、溶融して、十分にセラミック粒子を相互に接着することができる。
【００９４】
＜配線形成＞
本発明では、グリーンシートに高位置精度で孔あけできるため、グリーンシートを積み重ねる際のセラミック基板Ｚ方向（厚さ方向）の接続が、高位置精度で行えることから、微小径孔での配線の接続が可能となる。さらに、本発明では、グリーンシートに高位置精度で孔あけできるため、多数のビア配線による、短いピッチでの接続が可能となるので、従来と比べ配線の高密度化ができる。また、同様に、本発明では、グリーンシートに高位置精度で従来よりも多数の孔をあけることができるため、これにあわせて配線幅を小さくすることで、ＸＹ方向（表面の縦横方向）の配線についても高密度化できる。
【００９５】
ところで、配線の形成は一般的な配線形成方法を適用することができる。例えば、スクリーン印刷法により銅配線を形成する場合には、Ｃｕ、Ｃｕ合金、または、ガラスを添加したＣｕ等の導体を含むＣｕペーストを、所望の配線パターンを形成したスクリーン版およびスクリーン印刷機で、グリーンシート表面に印刷して、配線パターンを形成する。この場合、配線形成の精度はスクリーンのパターン精度およびスクリーン印刷時のパターン精度で決まるが、この精度は上述のグリーンシートへの孔加工時の位置精度より高精度である。すなわち、配線の高密度化の限界はグリーンシートへの孔加工時の位置精度で概略決まり、基板サイズにもよるが、焼結前で０．１５ｍｍピッチ程度である。
【００９６】
＜焼成＞
セラミック配線基板を焼成する際の高寸法精度化は、焼成時にセラミック配線基板の厚さ方向に圧力を加えることによって達成できる。すなわち、セラミック成形の焼成時に、厚さ方向に圧力を加えることによって、表面に摩擦力または拘束力を発生させる。この摩擦力または拘束力を最適に制御することにより、平均焼成収縮率をほぼ０とし、同時に収縮率ばらつきもほぼ０に低減することができる。
【００９７】
なお、この時、収縮抑制力は、加圧される基板と加圧する側との間に働く摩擦力によって生じているので、拘束されている表面から厚さ方向から離れるほど収縮抑制力は小さくなり、反対に収縮量は大きくなる。すなわち、加圧力を焼成時に基板がつぶれない程度の範囲内で、基板表面の焼成による収縮を抑えるために必要な拘束力となるように最適化することによって、側面形状は凹型となる。
【００９８】
また、同様に、基板表面の焼成による収縮を抑えることができる範囲内の拘束力を加えるとともに、セラミック基板材料に発生する塑性変形量を適正範囲内に制御することによって、焼成後のセラミック配線基板の側面形状は凸型となる。
【００９９】
なお、加圧力を適正範囲以上に大きくすると塑性変形によって基板が大きくつぶれて基板厚さが所定の寸法以下となると同時に、内部配線の変形とともに基板表面パターンにも伸

びの寸法変化が起きる。

【０１００】

本発明のガラス材料およびバインダを用いてグリーンシートを作製し、その表面に銅配線を形成して、加圧焼結した時の、平面方向（表面の縦横方向）および厚さ方向の寸法変化率を、図２０に示す。加圧力の調整によって摩擦力を最適化すれば、基板表面パターン寸法変化率を、ある加圧力範囲でほぼ０とすることができる。この時の凹または凸型の側面変化量は、内部配線の変形を考慮すれば、焼成後の基板厚さの１／２以下であることが好ましい。

【０１０１】

ここで、加圧力および摩擦係数としては、材料構成および焼成条件によってそれぞれの適正範囲があるために特に限定されるものではないが、概ね加圧力としては１００ｇ／ｃｍ^{2}以上、摩擦係数としては特に数値が限定されることはなく基板表面パターンの収縮を抑えるのに必要な拘束力が得られれば良い。

【０１０２】

成形体に圧力を印加するには、例えば、接触面に大きな摩擦力が得られ、かつ、セラミック成形体の焼成温度範囲で寸法安定性が高い板状の加圧部材２枚の間に、セラミック成形体を挟んで加圧する。なお、成形体を加圧部材に挟持しながら積層すれば、同時に２個以上の基板の焼結ができる。

【０１０３】

加圧部材の熱膨張係数がセラミック配線基板と同一であれば、表面パターンの収縮を完全に拘束する圧力を印加すると、収縮率は０となる。また、加圧部材の熱膨張係数がセラミック配線基板の熱膨張係数と異なっている場合には、焼成プロセスの冷却過程において、セラミック配線基板が塑性変形を起こさない温度と室温との間の温度範囲内における、両者の熱膨張率差に基づく寸法変化が起こる。すなわち、加圧部材の熱膨張係数がセラミック配線基板よりも大きい場合には、表面パターンが小さくなるような寸法変化が起こり、加圧部材の熱膨張係数がセラミック配線基板よりも小さい場合には、表面パターンが大きくなるような寸法変化が起こる。見方を変えれば、加圧部材に種々の熱膨張係数の材料を使用することで、セラミック配線基板の寸法の調整が可能であり、概ね－０．２％～＋０．８％の範囲での制御ができる。

【０１０４】

なお、印加する圧力は、焼成過程全体で一定にするよりも、温度に応じて最適な圧力に適正化することがより好ましい。セラミック配線基板の寸法変化を引き起こす主要因は、焼成の初期段階では、グリーンシートおよびＣｕペースト中のバインダ成分の溶融や熱分解除去によるものであり、中期段階では、セラミック粉末粒子の焼結収縮によるものであり、後期段階では、セラミック材料のガラス成分の軟化溶融にともなう液相成分による焼結収縮によるものである。これらの原因による焼結の収縮力は、互いに異なる場合が多いため、各段階において最適な加圧力に制御することが好ましい。

【０１０５】

つぎに、加圧焼成と脱バインダとの関係について述べる。グリーンシートに配線パターンを形成し、これらを積層し圧着し、得られた積層体を焼成してセラミック配線基板とする際には、グリーンシートおよび配線用導体ペーストに含まれるバインダを除去する必要がある。セラミック配線基板として、ここでは、ガラス／銅配線基板を例にとって詳しく説明する。

【０１０６】

銅は酸化されやすいが、窒素中では還元されるため、脱バインダは、窒素と水蒸気の混合ガス、または、窒素、水蒸気、水素の混合ガス等の非酸化性雰囲気または還元性雰囲気において行なわれる。バインダ残渣物のカーボンは、水蒸気中での熱力学的な反応によって除去される。その後の焼結工程は、例えば、窒素雰囲気でおこなう。

【０１０７】

バインダ除去時間を短縮するためには、上記のカーボンの除去反応速度が大きくなるよう

に、雰囲気ガスが焼成する基板内に常に行き渡るようにすることが望ましい。したがって、圧力を加えるために基板に加圧部材の材料としては、通気性が高いものが好ましい。

【０１０８】

このような通気性が高く、かつ前述したように寸法が安定で加圧力以上の強度を持つもつ材料としては、例えば、多孔質セラミック板や耐熱セラミック繊維材を成形して得られる多孔質板などがあり、その気孔率が５０％以上、より好ましくは７０％以上のものを用いることが望ましい。気孔率が６０％以上の通気性の十分な厚さの材料で加圧し、雰囲気ガスを十分に供給した場合には、基板側面と同様に上下面からも通気ができるので、無加圧すなわち通常の台板上に置いて焼成する場合とほとんど同様の時間での脱バインダできる。

【０１０９】

さらに、先に述べたように、カーボンの除去反応を短時間化するためには、できる限り高温度、好ましくは８００℃以上の温度で、かつ、基板材料として用いるガラス内部にカーボンが閉じ込められてカーボンの除去が妨げられることがないように、ガラスの軟化点付近以下の温度で行うほうが良い。本発明では、軟化点が８５０～１１００℃の高軟化点ガラス材料を用いることから、カーボン除去反応を８００℃以上、組成によっては８５０℃以上とすることができる。８５０℃とした場合には、８００℃でのカーボン除去時間の約１／３の時間とすることができ、脱バインダ時間をさらに短時間化できる。

【０１１０】

また、この加圧焼成は、高寸法精度のセラミック配線基板を得ることができるだけでなく、セラミック材料と導体材料の焼成収縮率差を吸収できることから、一般的な無加圧焼成を行なう場合に必要な、セラミック材料と導体材料との焼成収縮率の厳密な整合を必要としない。また、加圧焼成によって焼成されたセラミック配線基板の表面は、基板を加圧部材表面に倣うため、加圧部材表面と同様の平坦さになる。これにより、基板表面の平坦性は、通常の無加圧焼成時と比較して大幅に改善される。例えば、加圧部材表面の平坦性を２０μｍとすると、この面に接して加圧された基板表面もほぼ２０μｍとなる。このことは、基板表面を研削することなく、基板表面に厳密な平坦性が要求される薄膜工程（基板表面に薄膜配線層を形成する工程）を行なうことができる。

【０１１１】

また、加圧焼成では、焼成時に寸法変化が起こらないため、各基板毎の収縮率を決める必要がないので、原寸でのスクリーン設計ができるとともに、基板表面に薄膜配線層を形成する場合にも、通常の無加圧焼成の場合と比較して寸法変化がほとんど無く、かつ、収縮のバラツキも大幅に小さく、寸法精度が良いため、整合が容易になり、さらに、より配線密度の高い微細なパターンとも整合が可能となる。また、一般的な無加圧焼結では平面方向で約２０％の収縮があるが、加圧焼成ではほとんど収縮が無い。そこで、一般的な無加圧焼結の場合と比較して、より小さなワークサイズで、大きな基板を製造することができる。

【０１１２】

＜薄膜形成＞

つぎに、セラミック多層配線基板の表裏の少なくとも一方の面（以下、単に「基板表面」という）に、薄膜配線層を形成する方法について説明する。

【０１１３】

始めに、焼結後の基板表面の付着物を取り除いた後、表面を洗浄したのち、薄膜プロセスを実行する。なお、基板表面の厚膜配線パターンが必要無い、あるいは、厳密な平坦性が必要である、などの場合には、付着物を取り除いた後、洗浄する前に、必要に応じて、基板平坦化のためのラッピングを行い、表面をポリッシュする。

【０１１４】

薄膜プロセスによる薄膜配線層の形成は、例えば、つぎのようにして行なうことができる。

【０１１５】

まず、ポリイミド前駆体ワニスのスピン塗布により形成した塗膜を乾燥ベークした後、３５０～４００℃の温度で硬化させてポリイミド膜を形成する。続いて、この層間絶縁膜に所望のレジストパターンを形成した後、ヒドラジン－エチレンジアミン系の混合液やその他のアルカリ性混合液でエッチングすることによって所定のパターンの層間絶縁膜を形成する。この層間絶縁膜の形成は、感光性ポリイミド前駆体組成物を用いて、フォトリソグラフィ法により形成することもできる。

【０１１６】

得られた層間絶縁膜表面に、薄膜配線を形成する。まず、層間絶縁膜表面の全面にスパッタリングにより、クロム／銅／クロム積層膜、または、チタン／銅／チタン積層膜を成膜をする。なお、各層間のコンタクトを確保する必要がある場合には、スパッタ成膜直前に、アルゴンガスによるスパッタエッチを行う。この積層膜の所望の配線パターンへの加工は、クロムの加工にはアルカリ性過マンガン酸カリウム水溶液またはアルカリ性フェリシアン化カリウム水溶液を主成分とするエッチャント、銅の加工にはリン酸／硝酸系の混合液エッチャント、チタンの加工にははアンモニア／過酸化水素系エッチャントを用いて行う。これにより、所望のパターンの薄膜配線が得られる。

【０１１７】

以上の層間絶縁膜形成工程および薄膜配線形成工程を、所望の回数繰り返すことにより、所定の層数の薄膜配線層が形成される。

【０１１８】

＜電子回路装置の組立ておよび電子計算機の作製＞

電子回路装置の組立ての一例として、電子計算機用のモジュールの組み立てについて用いて説明する。本発明における電子計算機用のモジュールの製造プロセスを、図２２に示す。図２２において、（ａ）～（ｆ）は、図２と同様に、セラミック多層配線基板の焼結体４１の製造工程を示しており、（ａ）は、ボールミル工程を、（ｂ）はグリーンシート形成工程を、（ｃ）は孔あけ工程を、（ｄ）は導体印刷工程を、（ｅ）は積層圧着工程を、（ｆ）は焼結工程を、それぞれ示している。また、図２２の（ｇ）は焼結体４１の表面研磨工程を、（ｈ）は表面に薄膜配線層７１を形成した焼結体４１である薄膜・厚膜複合多層配線基板７１を、（ｉ）は薄膜・厚膜複合多層配線基板１７を備えるモジュール６１を、（ｊ）はモジュール６１を備える命令プロセッサ１８５を、それぞれ示している。

【０１１９】

まず、片面または表裏両面に薄膜配線層７１を形成したセラミック多層配線基板（ガラス／銅多層配線基板が望ましい）１７に（図２２（ｈ））、入出力ピン１２、半導体素子または半導体素子を封止したチップキャリア１１、さらには冷却用フィン１５、水冷ジャケット１６を順次取付けて、モジュール６１を作製する。作製されるモジュール６１を図２３に示す。

【０１２０】

なお、セラミック多層配線基板１７表面の配線パターンに直接入出力ピン１２等を接続せず、必要な組成の金属膜層をスッパタ成膜し、必要に応じてめっきをして、接続層を形成し、この接続層を介して入出力ピン５９等を取り付けてもよい。

【０１２１】

例えば、これらの部品のうち、入出力ピン１２は、基板表面に接続用パッドにニッケル／タングステン合金膜をスパッタで形成した後、所定量のろう材をヘッド部に固着させてある入出力ピンをカーボン製の位置決め治具を用い、金属層が酸化しない雰囲気でリフローすることによって、基板裏面にろう付けする。同様にして、融点の異なるはんだ材のハンダバンプを介して、チップキャリア１１を、続いて、さらに融点の異なるはんだで水冷ジャケット１６を、それぞれはんだ付けするようにする。

【０１２２】

このようにして作製したモジュール６１を、ケーブルコネクタ１８を介して、複数個多層プリント基板６３に搭載し、水パイプ６２を接続することで、命令プロセッサ１８５を作製する。作製される命令プロセッサ１８５を、図２４に示す。また、この命令プロセッサ

１８５を複数個使用すれば、大型電子計算機を作製することができる。

【０１２３】

【実施例】

〈実施例１〉

（１）ガラスの調製

$SiO_2-B_2O_3-R_2O$系ガラスが所望の組成となるように、原料である無水珪酸（SiO_2）、硼酸（H_3BO_3）、および炭酸カリウム（K_2CO_3）を種々の組成比になるように秤量し、それらをボールミル混合し、混合粉末を得た。次に、混合粉末を白金坩堝、あるいは白金－ロジウム坩堝に入れ、その坩堝を電気炉中に入れ、坩堝内の混合粉末が溶融する温度（溶融温度）で１時間加熱し、その後坩堝を電気炉から取り出し、坩堝を水に浸漬してガラス化して硼珪酸ガラスのガラス塊を得た。坩堝から取り出したガラス塊は、その一部を熱膨張係数測定用試料とし、他の一部は粉砕してガラス粉末試料とした。調製した試料のうちの一部（第１～１１の組成の試料）について、それぞれの組成比と、その組成比で調製したガラスの溶融温度、B_2O_3溶出量、軟化温度、熱膨張係数、比誘電率、およびクリストバライト結晶析出性とを表１に示す。また、これら第１～１１の各組成は、図１において、これらの各組成を示す点を中心とする小円により図示されている。なお、図示された小円内の数字は、それぞれ組成の番号を示している。

【０１２４】

【表１】

$SiO_2-B_2O_3-K_2O$系ガラス組成と特性（表１）

組成番号	組成（wt%）			溶融温度（℃）	B_2O_3溶出量（mg／m²）	軟化温度（℃）	熱膨張係数（$\times10^{-6}$／℃）	比誘電率	クリストバライト結晶析出
	SiO_2	B_2O_3	K_2O						
1	88	12	0	1700	6	1100	1.7	3.8	－
2	85	15	0	1700	10	1000	1.8	3.8	－
3	82	18	0	1700	20	850	1.8	3.8	－
4	89	10	1	1700	2.0	1100	2.1	4.0	＋
5	87	11.5	1.5	1700	2.0	950	2.2	4.1	＋
6	85	13	2	1700	4.0	880	2.3	4.2	＋＋
7	88	9	3	1700	0.7	1000	2.5	4.4	＋＋
8	87	9	4	1700	0.7	900	2.8	4.6	＋＋
9	84.7	10.8	4.5	1650	2.0	860	2.8	4.7	＋＋
１０	84	10	6	1650	2.0	850	3.8	5.0	＋＋
１１	90	5	5	1700	0.5	1100	3.7	4.8	＋＋

－：認められない。　＋：少量認められる。　＋＋：かなり認められる。

【０１２５】

（２）ガラス粉末の耐水性の評価

得られた硼珪酸ガラスの耐水性はつぎのようにして評価した。まず、ガラス粉末試料１ｇを１５０ｇの純水を入れた容積３００ｍｌのテフロン（デュポン社商品名）のビーカーに

入れた後、ポリエチレンフィルムでふたをし、そのテフロンビーカーを９０℃に保った恒温槽に８時間入れた。つぎに、テフロンビーカー内の試料水を取り出し、遠心分離して、その上澄み液を濾過し、得られた濾液を分析液とした。この分析液中に溶出したＢ原子を、ＩＣＰ（高周波誘導結合プラズマ：Inductively Coupled Plasma）発光分光分析により検出し、その量を求めた。さらに、ＢＥＴ（ブルナウアーエメットーテラー：Brunauer-Emmett-Teller）法によりガラスの比表面積を求め、Ｂ原子の検出値とガラスの比表面積とから、ガラス粉末の単位表面積当りのB_2O_3溶出量を算出した。結果を図３に示す。また、第１～１１の組成のガラスについては、求めたB_2O_3溶出量を表１にも示した。なお、図３には表１に示したもの以外の組成のガラスについての実験結果も含まれている。

【０１２６】

図３において、線ａはB_2O_3溶出量が２０ｍｇ／m^2の等溶出量曲線、線ｂはB_2O_3溶出量が１０ｍｇ／m^2の等溶出量曲線、線ｃはB_2O_3溶出量が６ｍｇ／m^2の等溶出量曲線、線ｄはB_2O_3溶出量が４ｍｇ／m^2の等溶出量曲線、線ｅはB_2O_3溶出量が２ｍｇ／m^2の等溶出量曲線、線ｆはB_2O_3溶出量が０．７ｍｇ／m^2の等溶出量曲線、線ｇはB_2O_3溶出量が０．５ｍｇ／m^2の等溶出量曲線を示す。図３に示すように、ガラス成分としてのK_2Oが約３ｗｔ％以下のガラス組成物では、K_2O成分量が増大するに従いB_2O_3溶出量が減少し、K_2Oが約３ｗｔ％を超えるガラス組成物では、B_2O_3成分量が増大するに従いB_2O_3溶出量が減少する。

【０１２７】

（３）グリーンシートの耐水性の評価

種々の組成の$SiO_2-B_2O_3-K_2O$系ガラスの粉末試料を用いて、それぞれグリーンシートを作製し、室温の５５～９２％相対湿度雰囲気中に放置し、硼酸結晶の析出状況を調べた。

【０１２８】

B_2O_3溶出量が２０ｍｇ／m^2のガラス組成物（表１の第３の組成、図３ではａ１として図示）を用いた場合、５５％相対湿度下における１か月の放置では、問題となる硼酸結晶の析出は見られないが、７５％相対湿度以上における１週間の放置で問題となる硼酸結晶の析出が見られた。

【０１２９】

一方、B_2O_3溶出量が２ｍｇ／m^2のガラス組成物（表１の第４の組成（図３ではｅ１として図示）、第５の組成（図３ではｅ２として図示）、第９の組成（図３ではｅ３として図示）、第１０の組成（図３ではｅ４として図示）、および、図３でｅ５として図示される組成の５種類の組成のガラス）を用いた場合、７５％～９２％相対湿度の雰囲気下における２か月の放置でも、問題となる硼酸結晶の析出は見られなかった。

【０１３０】

したがって、B_2O_3溶出量が２０ｍｇ／m^2以下のガラス組成物を用いた場合には、保管や取扱いの際の雰囲気の制限が緩くなり、特にB_2O_3溶出量が２ｍｇ／m^2以下のガラス組成物を用いた場合には、保管や取扱いの際の雰囲気に制限がほとんどなくなり、好ましい。しかし、B_2O_3溶出量が２０ｍｇ／m^2のガラス組成物であっても、グリーンシートの保管や取扱いの際の雰囲気に制限があるが、実用に供することはでき、本発明に用いることはでき、他の特性が好ましいものであれば、本発明に用いることはできる。

【０１３１】

（４）熱膨張係数の評価

作製した硼珪酸ガラス試料について、ガラス塊を直径約４ｍｍ、長さ約１５ｍｍに加工し、レーザー干渉式熱膨張計で０℃から２００℃の温度範囲における熱膨張係数を求めた。求められた第１～１１の組成の熱膨張係数を表１に示す。第１～１１の組成のガラスの熱膨張係数は、いずれも４．０×10^{-6}／℃以下と低く、フィラーを添加することにより、容易に熱膨張係数をシリコンのそれに整合させることができる。

【０１３２】

（５）軟化温度の評価

ガラス粉末試料について、通常の示差熱分析により軟化温度を測定した。第１～１１の組成の測定結果を、表１に示す。軟化温度は８５０～１１００℃であることが好ましい。第１～１１の組成のガラスの軟化温度は、いずれもこの範囲に含まれており、表１に示した結果から、これらの組成は本発明に適していることがわかる。

【０１３３】

（６）クリストバライト結晶の析出の評価

まず、ガラス粉末試料１ｇを通常のプレス法で直径１５ｍｍの円板状に成形し、それを電気炉で８００℃に５０時間保持する熱処理を行なって焼結体を得た。熱処理条件は多層基板製造条件を想定し、ガラスからの結晶析出として厳しくなる条件とした。得られた焼結体について、Ｘ線回折強度によりクリストバライト結晶量を測定した。第１～１１の組成のガラスについての測定結果を表１に示す。いずれの組成についても、析出したクリストバライト結晶の量は、実用に供することのできる範囲内であったが、K_2Oの量が多い第６～１１の組成では、クリストバライト結晶の析出がかなり認められた。

【０１３４】

（７）比誘電率の評価

ガラス粉末試料約１０ｇを、通常のプレス法で直径４７ｍｍの円板状に成形し、それを電気炉で約８００℃に２時間保持する熱処理を行なって、焼結体を得た。得られた焼結体を厚さ約０．５ｍｍに加工し、さらにその両面に電極としてＣｒ／Ｃｕの膜をスパッタ成膜し、ＬＣＲ（inductance capacitance resistance）メーター（測定周波数：１ＭＨｚ、入力信号レベル：１Ｖｒｍｓ）により電気容量を測定して、比誘電率を求めた。第１～１１の組成のガラスについての測定結果を表１に示す。第１～１１の組成のガラスの比誘電率は、いずれも５．０以下と低く、好ましい。

【０１３５】

（８）評価のまとめ

以上の結果をまとめると、$SiO_2-B_2O_3-R_2O$系三角組成図において、第１の組成を示す点と第３の組成を示す点と第１０の組成を示す点と第１１の組成を示す点と第４の組成を示す点と第１の組成を示す点とをこの順で結ぶ線により囲まれる範囲（線上の組成も含む）に含まれる組成のガラスは、軟化温度が８５０～１１００℃であり、耐水性は実用レベルであり、熱膨張係数も４．０×10^{-6}/℃以下であってフィラーの添加によりシリコンに整合させることができるものであった。また、クリストバライト結晶析出性および比誘電率も実用に耐えるものである。

【０１３６】

一方、第４の組成を示す点と第５の組成を示す点と第９の組成を示す点と第１０の組成を示す点と第１１の組成を示す点と第４の組成を示す点とをこの順で結ぶ線により囲まれる範囲（線上の組成も含む）に含まれる組成のガラスは、B_2O_3溶出量が２ｍｇ／m^2以下と特に少ないため、保管や取扱い雰囲気の制限がほとんどなく、特に好ましい。

【０１３７】

＜実施例２＞

つぎに、炭酸カリウム（K_2CO_3）の代わりに炭酸ナトリウム（Na_2CO_3）を用い、実施例１と同様にして、各種の組成比を有する$SiO_2-B_2O_3-Na_2O$系ガラスを調製した。得られたガラス試料について、実施例１と同様にして各種特性を評価したところ、実施例１のK_2O系ガラスと同様に、本発明の目的に適した溶融温度、軟化温度、熱膨張係数、比誘電率を備えていた。ただし、耐水性およびクリストバライト結晶析出性についての測定結果から、Na_2O系ガラスにはつぎのような特徴があることがわかった。

【０１３８】

図１９に$SiO_2-B_2O_3-Na_2O$系ガラスのB_2O_3溶出特性を示す。図１９において、線ａはB_2O_3溶出量が２０ｍｇ／m^2の等溶出量曲線、線ｂはB_2O_3溶出量が１０ｍｇ／m^2の等溶出量曲線、線ｃはB_2O_3溶出量が６ｍｇ／m^2の等溶出量曲線、線ｄはB_2O_3溶出量が４ｍｇ／m^2の等溶出量曲線、線ｅはB_2O_3溶出量が２ｍｇ／m^2の等溶出量曲線を示す。

【０１３９】
$SiO_2-B_2O_3-K_2O$系ガラスのB_2O_3等溶出曲線（図３）では、各等溶出曲線がほぼ平行に並んでいるのに対して、$SiO_2-B_2O_3-Na_2O$系ガラスのB_2O_3等溶出曲線（図１９）は乱れている。これは、Na_2O系ガラスでは、組成の異なる２種のガラス相に別れる傾向、すなわち、分相する傾向が大きいためと考えられる。また、Na_2O系ガラスは、実用性が損なわれるほどではないが、熱処理によるクリストバライト結晶の析出量が多く、K_2O系ガラスの約２倍であった。従って、Na_2O系およびK_2O系は、いずれも本発明に用いることができるが、分相する傾向およびクリストバライト結晶の析出の少ないK_2O系ガラスの方が、より好ましいと考えられる。

【０１４０】
＜実施例３＞
次に、SiO_2、B_2O_3、R_2Oに加えて、さらにAl_2O_3を含む場合のガラスについて検討した。本実施例では、$SiO_2-B_2O_3-R_2O$系三角組成図において、第１の組成を示す点と第３の組成を示す点と第１０の組成を示す点と第１１の組成を示す点と第４の組成を示す点と第１の組成を示す点とをこの順で結ぶ線により囲まれる範囲（線上の組成も含む）に含まれる組成の例として、$SiO_2$８６．６ｗｔ％、$B_2O_3$９．３ｗｔ％、K_2O４．１ｗｔ％の組成（ほぼ第８の組成）になるように調製された、無水珪酸、硼酸、炭酸カリウムの混合粉末を用いた。この混合粉末に、さらにアルミナ（Al_2O_3）粉末を表２に示す組成になるように添加して、ボールミル混合し、表２に示す第１２～１６の組成の混合粉末を得た。この混合粉末を用いて、実施例１と同様にしてガラスを作成し、その特性を評価した。それぞれの組成におけるAl_2O_3およびR_2O（本実施例ではK_2O）の比率（モル比）と、溶融温度、熱膨張係数、および比誘電率についての測定結果とを表２に示す。表２に示した測定結果からわかるように、Al_2O_3の添加量を増やしても、熱膨張係数および比誘電率はほとんど変化せず、好ましい値の範囲に含まれている。

【０１４１】
【表２】

$SiO_2-B_2O_3-K_2O-Al_2O_3$系ガラス組成と特性（表２）

組成番号	組成（wt%）				$\frac{Al_2O_3}{K_2O}$（モル比）	溶融温度（℃）	熱膨張係数（$\times10^{-6}$/℃）	比誘電率
	SiO_2	B_2O_3	K_2O	Al_2O_3				
１２	85.5	9.2	4.0	1.3	0.3	1700	2.8	4.7
１３	84.7	9.1	4.0	2.2	0.5	1700	2.8	4.7
１４	84.0	9.0	4.0	3.0	0.7	1700	2.8	4.7
１５	83.6	9.0	4.0	3.4	0.8	1700	2.7	4.7
１６	83.2	8.9	4.0	3.9	0.9	1750	2.7	4.8

【０１４２】
つぎに、B_2O_3溶出量に対するAl_2O_3の添加の影響について検討する。Al_2O_3を添加していない第８の組成のガラスと、上記第１２～１６の組成のガラスとのB_2O_3溶出量を図４に示す。図４では、Al_2O_3の添加量はガラス成分中のK_2O量とのモル比で規格化してある。また、小円内の数字は、その小円の示すガラスの組成の番号を示している。図４より、Al_2O_3の添加量を増加させるとB_2O_3溶出量も増加することがわかる。しかし、K_2Oモル量の９０％のAl_2O_3を添加しても、B_2O_3溶出量は１．６ｍｇ／m^2と少なく、Al_2O_3の添加によるB_2O_3溶出量の増加は問題とならないと考えられる。

【０１４３】
さらに、軟化温度に対するAl_2O_3の添加の影響について検討する。第８、１２～１６の組成のガラスの軟化温度を図５に示す。図５においても、図４と同様、Al_2O_3の添加量はガラス成分中のK_2O量とのモル比で規格化してある。また、小円内の数字は、その小円の示すガラスの組成の番号を示している。図５から、Al_2O_3の添加量がK_2Oモル量の９０％を超えと、該組成のガラスの軟化温度は１１００℃を超えてしまうことがわかる。従って、このような多量のAl_2O_3は好ましくない。
【０１４４】
最後に、クリストバライト結晶の析出性に及ぼすAl_2O_3の添加の影響について検討する。第８、１２～１６の組成のガラスにおけるクリストバライト析出量（クリストバライト結晶の回折強度により示される）を図６に示す。図６においても、図４と同様、Al_2O_3の添加量はガラス成分中のK_2O量とのモル比で規格化してある。また、小円内の数字は、その小円の示すガラスの組成の番号を示している。図６より、Al_2O_3の添加量が増加すると、クリストバライト結晶X線回折強度（すなわち、析出したクリストバライト結晶の量）は減少することがわかる。Al_2O_3の添加量がK_2Oモル量の８０％以上の場合、熱処理によってもクリストバライト結晶が析出しない。
【０１４５】
クリストバライト結晶は前述のように約２３０℃で非常に大きな体積変化を伴う結晶相の転移を生じるので、基板の割れの原因となり、その析出は好ましくない。しかし、焼成時に予想されるガラスとフィラーとの反応において、フィラー材料に硼珪酸ガラスのクリストバライト結晶を抑止する効果があれば、ガラス単体ではクリストバライト結晶が析出する条件であっても、析出しないことになる。従って、ガラスとフィラーとの複合体を用いて基板を作製する場合には、ガラス単体ではクリストバライト結晶が析出する組成のガラスであっても、フィラーとの複合体組成でクリストバライト結晶が析出しなければ、本発明に適用する上では問題無いと言える。従って、第８の組成や第１２の組成のガラスであっても、本発明に用いることができる。ただし、ガラス単独でも熱処理によるクリストバライト結晶の析出が抑制されていれば、フィラー材料の選択の幅が広がるとともに、製造プロセスの安定化を図ることができるという長所がある。
【０１４６】
以上の実験結果から、R_2Oに対してモル比で９０％以下のAl_2O_3を添加してガラスを調製することが望ましいことがわかる。また、R_2Oに対してモル比で５０％以上のAl_2O_3を添加すれば、クリストバライト結晶の析出をかなり抑制することができ、８０％以上では、析出を完全に抑制することができるため非常に好ましいことがわかる。
【０１４７】
＜実施例４＞
次に、SiO_2、B_2O_3、R_2O、Al_2O_3に加えて、さらにZnOを添加した場合（$SiO_2-B_2O_3-R_2O-Al_2O_3$－ZnO系ガラス）について検討した。まず、表３に示す組成になるように秤量した無水珪酸、硼酸、炭酸カリウム、炭酸ナトリウム、アルミナ、および酸化亜鉛（ZnO）の粉末を、ボールミル混合し、表３に示す第１７～２３の組成の混合粉末を得た。この混合粉末を用いて、実施例１と同様にしてガラスを作成し、その特性を評価した。それぞれの組成における溶融温度、B_2O_3溶出量、軟化温度、熱膨張係数、比誘電率、およびクリストバライト結晶析出性についての測定結果を表３に示す。
【０１４８】
【表３】

$SiO_2-B_2O_3-R_2O-Al_2O_3-ZnO$系ガラス組成と特性（表３）

組成番号	組成（wt%）					溶融温度（℃）	B_2O_3溶出量（mg/m²）	軟化温度（℃）	熱膨張係数（$\times10^{-6}$/℃）	比誘電率	クリストバライト結晶析出
	SiO_2	B_2O_3	R_2O	Al_2O_3	ZnO						
１７	82.0	13.0	Na_2O=1 K_2O=1	1.0	2.0	1700	1.9	900	2.0	4.2	＋
１８	84.0	11.0	Na_2O=1 K_2O=1	1.0	2.0	1700	1.2	950	2.3	4.2	＋
１９	86.0	9.0	Na_2O=1 K_2O=1	1.0	2.0	1700	0.6	1000	2.0	4.2	＋
２０	85.0	8.0	Na_2O=1 K_2O=1	3.0	2.0	1700	0.5	1060	2.3	4.3	－
２１	84.0	9.0	Na_2O=1 K_2O=1	3.0	2.0	1700	0.6	1040	2.3	4.3	－
２２	83.0	10.0	Na_2O=1 K_2O=1	3.0	2.0	1700	0.7	1020	2.2	4.3	－
２３	83.0	10.0	K_2O=2.0	3.0	2.0	1700	0.7	1020	2.3	4.3	－

－：認められない。　＋：少量認められる。　＋＋：かなり認められる。

【０１４９】
表３に示したように、第１７～２３の組成のガラスは、いずれも、B_2O_3溶出量、熱膨張係数および比誘電率は低い値であり、好ましい。また、軟化温度も９００～１０６０℃であり、好ましい。さらに、クリストバライト結晶の析出も認められないか、認められても少量であり、好ましい。

【０１５０】
つぎに、第２の組成（組成比は表１に示した）の原料混合粉末に、種々の量のＺｎＯ粉末を添加してガラスを調製し、このガラスから溶出するB_2O_3量を実施例１と同様にして測定した。ＺｎＯの添加量とB_2O_3溶出量との関係を図９に示す。図９より、ＺｎＯを添加することにより、B_2O_3溶出量を劇的に減少させることができることがわかる。従って、本実施例から、ガラスを調製する際には、ＺｎＯを添加することが好ましいことがわかる。また、表３に示すように、$SiO_2-B_2O_3-Na_2O-K_2O-Al_2O_3-ZnO$系ガラスは$B_2O_3$溶出量が少なく、比誘電率も低いという特徴がある。なお、ＺｎＯの添加量が１重量％より少ない場合には、添加の効果が得られず、ＺｎＯの添加量が４重量％より多い場合には、熱処理によるガラスからの結晶析出が起こり易いという問題がある。従って、本実施例から、ＺｎＯの添加量は１重量％以上４重量％以下であることが望ましいことがわかる。

【０１５１】
〈実施例５～２１、比較例１〉
（１）焼結体の調製
つぎに、ガラス組成物にフィラーを混合した場合の効果について検討した。まず、実施例５～１２および比較例１では第１４の組成（表２に示した）のガラスの粉末を、実施例１３～１５では第９の組成（表１に示した）のガラスの粉末を、実施例１６では第１９の組成（表３に示した）のガラスの粉末を、実施例１７～２０では第２３の組成（表３に示した）のガラスの粉末を、実施例２１では第１の組成（表１に示した）のガラスの粉末を、それぞれ用意した。このガラス粉末に、フィラー粉末を種々の割合で混合し、表４に示す１８種類のセラミック複合物を得た。ガラス粉末の平均粒径（直径）は約４μｍ、フィラーの平均粒径（直径）は約３μｍとした。なお、フィラーとして、実施例１～１１、１３～１５、１７～１８および比較例１ではムライト（$3Al_2O_3\cdot2SiO_2$）を用い、実

施例１２ではムライトおよびアルミナ（Al_2O_3）を用い、実施例１６ではアルミナおよびコージェライト（$2MgO・2Al_2O_3・5SiO_2$）を用い、実施例１９および２１ではアルミナを用い、実施例２０ではアルミナおよび石英ガラス（SiO_2ガラス）を用いた。

【０１５２】

得られたセラミック複合物１００重量部と、変性アクリル樹脂を主成分とする水溶性の有機バインダ約１４重量部と、溶剤としての水約７５重量部と、アクリル酸アンモニウム塩系分散剤０．３重量部とをボールミルで混合し、スラリーを作製した。ここで、バインダ材料には、孔あけ位置精度が良く、環境の安全衛生上好ましい水溶性有機バインダとして、ヒタロイド２７１３（商品名：日立化成工業（株）製）を用いた。

【０１５３】

【表４】

硼珪酸ガラス－フィラー系の組成と特性（表４）

	ガラス組成の番号	ガラス量 (vol%)	フィラー組成 (vol%)				焼結温度 (℃)	熱膨張係数 ($\times10^{-6}$/℃)	曲げ強度 (MPa)	比誘電率
			ムライト	アルミナ	コージェライト	石英ガラス				
実施例５	14	90	10	0	0	0	975	2.9	200	5.0
実施例６		85	15	0	0	0	975	2.9	200	5.1
実施例７		80	20	0	0	0	1000	3.0	200	5.2
実施例８		75	25	0	0	0	1000	3.0	210	5.2
実施例９		70	30	0	0	0	1020	3.1	220	5.3
実施例10		65	35	0	0	0	1025	3.1	210	5.4
実施例11		60	40	0	0	0	1050	3.2	200	5.5
比較例１		55	45	0	0	0	1100	3.2	200	5.5
実施例12		70	22	8	0	0	1020	3.6	210	5.4
実施例13	9	80	20	0	0	0	900	3.0	200	5.3
実施例14		70	30	0	0	0	950	3.1	200	5.4
実施例15		60	40	0	0	0	1000	3.2	210	5.6
実施例16	19	65	0	20	10	0	1000	3.1	240	5.1
実施例17	23	75	25	0	0	0	1000	2.7	220	4.7
実施例18		70	30	0	0	0	1020	2.8	230	4.8
実施例19		75	0	25	0	0	1000	3.4	240	5.0
実施例20		70	0	15	0	15	1020	3.0	200	4.6
実施例21	1	95	0	5	0	0	1050	2.0	150	4.3

【０１５４】
次に、得られたスラリーを用い、ドクタブレード法により厚さ０．２mm、幅４５０mmのグリーンシートを作製した。グリーンシートは１５０mm角あるいは５０mm角の正方形に切断した。１５０mm角のグリーンシートにはポンチで直径０．１mmの孔（スルーホール）を０．４mmピッチであけた。その孔に、銅ペーストを印刷法で埋め込みビアホールとし、さらにはグリーンシート表面にも銅ペーストを印刷して０．０８mm幅の配線パターンを通常の方法で形成したものを、４～５０層積層し、１３０℃、２０MPaの圧力で１０分間プレスして、グリーンシート積層体を得た。また、５０mm角のグリーンシートは、強度や比誘電率、残留カーボン量を測定するための試料として、孔あけや導体印刷をせずに、４～５０層積層し、１３０℃、２０MPaの圧力で１０分間プレスして、グリーンシート積層体を得た。

【０１５５】
得られたグリーンシート積層体を雰囲気制御可能な電気炉に入れ、水蒸気－窒素－水素ガス雰囲気のもとで、炉内の温度を室温から７００～８８０℃に１００℃／時間の昇温速度で上げ、その温度で１０～５０時間保持して、残留カーボンが２００ppm以下になるまで脱バインダ焼成を行った。その後、炉内の温度を、再び１００℃／時間の昇温速度で表４に示す焼結温度に上げ、その温度で２時間保持して緻密化焼結を行って、セラミック焼結体を得た。

【０１５６】
得られたセラミック焼結体（５０mm角グリーンシート積層体の焼結体）の熱膨張係数と比誘電率とを、実施例１と同様の方法により測定した。さらに、この焼結体の曲げ強度を、ＪＩＳ規格（Ｒ１６０１）に従い、長さが３８mm、幅が４mm、厚さが３mmになるように加工し、スパン３０mmの３点曲げ試験により測定した。以上の測定結果を表４に示す。

【０１５７】
実施例５～２１および比較例１のセラミック焼結体の熱膨張係数は、いずれも２．０～３．６×10^{-6}／℃以下と、シリコンの熱膨張係数（３．０×10^{-6}／℃）に近い値であった。また、実施例５～２１および比較例１のセラミック焼結体の曲げ強度は、いずれも１５０MPa以上であり、実用に供するのに十分な強度が得られた。さらに、焼結強度は、実施例５～２１では、いずれも１０５０℃以下であった。しかし、比較例１では、焼結温度が１１００℃に達してしまい、望ましくない結果となった。これは、フィラー量が多すぎるため焼結しにくくなってしまったものと考えられる。従って、フィラーの量は、４０％より多くないことが望ましい。

【０１５８】
また、焼結体の中央部を削り出し、この焼結体中央部に含まれるカーボン量を定量することにより、残留カーボン量を測定したところ、残留カーボン量は、実施例５～２１および比較例１のいずれの場合も２００ｐｐm以下であり、好ましい結果が得られた。さらに、１５０mm角グリーンシート積層体の焼結体の銅導体の抵抗を、四端子法により測定したところ、実施例５～２１および比較例１のいずれの場合も、銅導体の比抵抗は３μΩ・ｃｍと十分小さく、好ましい値であった。

【０１５９】
（２）脱バインダ温度の検討
つぎに、脱バインダのための熱処理温度について検討する。実施例９のグリーンシートを用い、種々の温度に保持して脱バインダを行って、セラミック焼結体中の残留カーボン量が２００ppm以下となるまでに要した時間（脱バインダ時間）を測定した。結果を図１０に示す。図１０からわかるように、熱処理温度が高い程、その温度における保持時間が短くなり、好ましいことがわかる。

【０１６０】
（３）フィラー量の検討
まず、脱バインダに必要なフィラー量について検討する。種々の組成のガラスと種々の量

のフィラー（ムライト（$3Al_2O_3・2SiO_2$））とを用いて調製されたグリーンシートについて、８００℃または８５０℃で脱バインダを行い、セラミック焼結体中の残留カーボン量を２００ppm以下にすることのできたグリーンシートの、ガラスの軟化温度と、フィラー量とを求めた。その結果を図１１に示す。

【０１６１】

図１１からわかるように、ガラスの軟化温度が低くなるに従い、脱バインダに必要なフィラー量が多くなる。また、脱バインダのための熱処理温度が高い程、必要なフィラー量が多くなる。これは、脱バインダが完了するためには、脱バインダのための熱処理の間、ガラス粒子の焼結が進まない必要があるからである。従って、ガラスの軟化温度が低くなる程、あるいは、脱バインダの温度が高い程、焼結を阻害するフィラーが必要となる。

【０１６２】

つぎに、緻密化焼結に必要なフィラー量と焼結温度とについて検討する。第１の組成（軟化温度１１００℃）、第２の組成（軟化温度１０００℃）、第５の組成（軟化温度９５０℃）、第１０の組成（軟化温度８５０℃）の４種類のガラスの粉末に、それぞれ種々の量のフィラー（ムライト）を添加してグリーンシートを調製し、これを脱バインダ処理し、さらに焼結を行い、焼結体相対密度を９８％以上にすることのできた焼結温度を求めた。求められた焼結温度とフィラー量との関係を、用いたガラスの軟化温度ごとに図１２に示す。図１２から、フィラー量が多くなる程、または、ガラス軟化温度が高くなる程、緻密化焼結に要する熱処理温度（焼結温度）が高くなることがわかる。

【０１６３】

なお、このようなフィラー量と焼結温度との関係は、図１３に示す焼結収縮カーブから考察することができる。ここで焼結収縮カーブは、熱処理中の形状、寸法を観察できるように石英ガラス反応管にグリーンシート積層体をいれて、１００℃／分で昇温しながら、各温度における形状を写真撮影し、寸法を計測して相対密度を計算することにより求めた。図１３において、曲線１３１は第１４の組成のガラス（フィラーなし）を用いて調製したグリーンシートの焼結曲線、曲線１３２～１３８は、それぞれ、実施例５～１１のグリーンシートの焼結曲線を示している。

【０１６４】

曲線１３１から、フィラーを添加していないグリーンシートは、８００℃付近で急激に焼結が進み緻密化することがわかる。一方、曲線１３２～１３８から、第１４の組成のガラスにフィラーが１０～４０体積％添加された実施例５～１１のグリーンシートでは、フィラー量が増大するに従い、相対密度の変化がなだらかになっており、焼結が起こりにくくなっていることがわかる。なお、図１３に示す焼結収縮カーブは、各温度における保持時間を０時間として求めたものであり、保持時間を長くすることにより、さらに緻密化が進行するものと考えられる。

【０１６５】

１０５０℃以下の焼結温度で短時間に焼結するためには、フィラー量を少なくし、ガラス軟化温度の低いガラスを用いる必要がある。一方、上述のように、フィラー量が少なすぎると、あるいは、ガラス軟化温度が低すぎると、脱バインダが完了しない可能性がある。また、脱バインダを行うことのできるフィラーおよび軟化温度であっても、焼結温度が高くなり過ぎてしまい、好ましくない場合もある。例えば、図１１からわかるように、ガラス軟化温度が８２０℃のガラスを用い、フィラー量を５０体積％とした場合は、８００℃で脱バインダを行うことができるが、この場合は、図１２から推測されるように、焼結温度は１０５０℃以上となってしまい、好ましくない。従って、第１４の組成のガラスを用いる場合、１０５０℃以下で緻密化焼結するフィラー量の上限は４０体積％と考えることができる。なお、その他の組成のガラスの焼結収縮カーブは、そのガラスの軟化温度に応じて、図１３において、第１４の組成のガラスの焼結収縮カーブ（曲線１３１）を横軸方向に、ほぼ平行移動すれば得られる。

【０１６６】

つぎに、焼結体の曲げ強度とフィラー量との関係について検討する。実施例５～１１によ

り得られた焼結体に加え、フィラーを添加せずに第１４の組成のガラスから調製したグリーンシートを脱バインダしたのち焼結して得られた焼結体と、第１４の組成のガラスにフィラーとして５ｖｏｌ％のムライトを添加して調製したグリーンシートを脱バインダしたのち焼結して得られた焼結体とを用意し、これらの焼結体の曲げ強度を、ＪＩＳ規格（Ｒ１６０１）に従って、長さが３８ｍｍ、幅が４ｍｍ、厚さが３ｍｍになるように加工し、スパン３０ｍｍの３点曲げ試験により測定した。得られた焼結体の曲げ強度とフィラー量との関係を図１４に示す。

【０１６７】

図１４から、フィラー量が５体積％から４０体積％の範囲で、実用レベルの強度（この場合１５０ＭＰａ以上の曲げ強度）が得られ、好ましいことがわかる。なお、曲げ強度は、２００ＭＰａ以上であることが、さらに好ましい。

【０１６８】

〈実施例２２〉

実施例５と同様の方法により図１５に示すような多層配線基板（層数：４０）を作製した。本実施例により作製した多層配線基板１７は、銅を導体とするビアホール５３および配線５２とガラスセラミック焼結体１５８とからなる。

【０１６９】

つぎに、図１６に示すようにＬＳＩ（大規模集積回路）１１およびＩ／Ｏ（入出力）ピン１２を接続ろう材１３、１４により取り付けた後、図１７に示すように、マイクロフィン１５、冷却ジャケット１６、およびコネクタ１８を取付け、電子計算機用モジュールである命令プロセッサ１８５を作製した。

【０１７０】

さらに、この命令プロセッサ１８５を用いて、図１８に示すように、主記憶装置１８１、拡張記憶装置１８２、システム制御装置１８３、入出力プロセッサ１８４、および命令プロセッサ１８５を備える電子計算機を製作したところ、従来の、ムライトを基板材料としタングステンを導体材料とする多層配線基板を用いて作製された命令プロセッサを備える電子計算機に比べて、約２倍の高速演算ができた。

【０１７１】

本実施例で作成した配線基板は、特に高速、高密度が要求される電子計算機など、広く電子回路装置に適用できる。

【０１７２】

＜実施例２３＞

本実施例２３では、有機バインダとして、水系分散型粒子を用い、ガラス／銅多層配線基板を作製した。その製造プロセスを、図２２を用いて説明する。

【０１７３】

（１）有機バインダの合成

精製水とイソプロパノールとを混合して、バインダ調製用溶剤（精製水：７０重量％、ＩＰＡ：３０重量％）を調製した。分散剤であるポリエチレンオキシド７重量部を、このバインダ調製用溶剤２５０重量部に溶解し、得られた溶液に、重合開始剤として、０．１５重量部の過硫酸アンモニウムを添加し、４０～９０℃に加熱しながら激しく撹拌しつつ、メタクリル酸ｎ－ブチル１００重量部および可塑剤としてフタル酸ジイソデシル１０．５重量部を添加して、さらに６～８時間撹拌し、平均粒径：０．８～２．５μｍ、平均重量分子量：５０～６５万の重合体である有機バインダを得た。

【０１７４】

（２）スラリーの調製

つぎに、第１４の組成（表２に示した）のガラスの粉末（平均粒径が約４μｍ）を用意し、このガラス粉末７０体積％と、フィラーとして平均粒径が約３μｍのムライト粉末３０体積％とをあらかじめ混合し、セラミック複合物を得た。

【０１７５】

このセラミック複合物１００重量部と、分散剤（ポリアクリル酸アンモニウム塩）０．１

３重量部と、スラリー調製用溶剤（精製水８０重量％とイソプロパノール２０重量％との混合溶液）４５重量部とを、アルミナボールおよびアルミナ内張りボールミル１（図２２（ａ））で予備混合した後、（１）で合成した有機バインダ（バインダ調製用溶剤に分散したままのもの）を、バインダ固形分換算で１７重量部加え、さらにボールミル混合を続け、ガラス粉末と、フィラー粉末と、バインダ粒子とが均一に混合したスラリーを作製した。

【０１７６】

（３）グリーンシートの作製

続いて、このスラリーを撹拌しながら減圧し、スラリー中の気泡を取り除くとともに、溶媒を蒸発させ、粘度を２０００～３０００ｃｐｓに調節して、ドクターブレイド型キャスティング装置２（図２２（ｂ））を用い、キャリアフィルム上に塗布して、厚さ０．２ｍｍのグリーンシート４を成形した後、１２０℃で約１時間乾燥させた。

【０１７７】

（４）セラミック多層配線基板の作製

このようにして作製したグリーンシート４の外形を切断して所定寸法とした後、金属製の支持枠に固定した。続いて、複数の超硬製パンチピン５が独立駆動可能なＮＣ（numerically control）制御された孔明け装置を用いて、支持枠に固定したグリーンシートに直径５０～７０μｍの貫通孔５１を０．３ｍｍピッチであけた（図２２（ｃ））。続いて、平均粒径４μｍのＣｕ粉末とビヒクルを５０重量部づつ混合したＣｕペーストを用い、スクリーン印刷法にて、グリーンシートの貫通孔にペーストを充填してビアホール５３を形成するとともに、グリーンシート表面に所定の配線パターン５２を形成した（図２２（ｄ））。

【０１７８】

次に、この配線パターン５２を形成したグリーンシート４を、接続する貫通孔部分の位置ずれが小さくなるように位置合わせして５０枚積み重ね（図２２（ｅ））、温度：１３０℃、圧力：１５０ｋｇ／ｃｍ^{2}で圧着し一体化した後、外形を所定寸法に切断した。得られた積層体４１の寸法は約１８０ｍｍ角、厚さは約１０ｍｍであった。

【０１７９】

続いて、焼成プロセスについて述べる。上記積層体４１の表裏に、アルミナファイバを主成分とする多孔質板６４（気孔率約７０％、平坦度３０μｍ）をそれぞれ配置し、加圧機構を備える雰囲気制御可能な電気炉８（図２２（ｆ））内に置いて積層体４１を加圧した。続いて、窒素雰囲気にてあらかじめ設定した脱バインダに最適な速度で昇温を開始するとともに、炉８内が結露しなくなる温度に達した時点で、炉８内雰囲気を窒素と水蒸気との混合雰囲気（水蒸気分圧０．３～０．５ａｔｍ）とし、８５０℃で１０～２０時間保持しながら脱バインダを行った。

【０１８０】

この時の積層体４１へ印加する圧力は、約１～３ｋｇ／ｃｍ^{2}とした。この圧力は、脱バインダプロセスにて平面方向の収縮をほぼ０にできる範囲内の圧力のうち、積層体４１の開気孔率を確保して脱バインダを阻害しないよう、比較的低い圧力を選択したものである。

【０１８１】

続いて、水蒸気を切り、炉内を窒素雰囲気とした後、積層体４１を加圧しながら再び昇温を開始し、９８０～１０４０℃の最高温度で１～３時間保持し、ガラスセラミック材料の気孔率が５％以下となり緻密化するようした。

【０１８２】

この時印加した圧力は、約１～４ｋｇ／ｃｍ^{2}とし、緻密化するとともに平面方向の収縮がほぼ０となり、かつ側面の凹量が小さくなるように制御した。

【０１８３】

最後に、窒素雰囲気にて焼結体を冷却した。冷却過程では、残留応力が小さくなるような温度および加圧プロファイルとなるようにそれぞれを制御した。以上により、ガラス／銅

多層配線基板が得られた。本実施例における焼成工程での寸法変化は、ＸＹ平面方向（基板表面の縦横方向）で０．１５±０．０２％であり、厚さ方向の収縮率は約４５％であった。

【０１８４】

＜比較例２＞

本比較例２では、非晶質ガラスとして市販品のパイレックスガラスを用い、有機バインダとしてポリビニルブチラールを用いて、セラミック多層配線基板を作製した。

【０１８５】

（１）スラリーの調製

平均粒径４μｍのパイレックスガラス粉末６０体積％と、フィラーとして平均粒径が約３μｍのムライト粉末４０体積％とを、あらかじめ混合し、セラミック複合物を調製した。

【０１８６】

このセラミック複合物１００重量部と、有機バインダとしてポリビニルブチラール６重量部と、可塑剤としてブチルフタリル・ブチルグリコレート２重量部と、トリクロルエチレン、テトラクロルエチレン、およびブチルアルコールからなるアゼオトロープ組成の溶剤とを加えあわせ、アルミナボールおよびアルミナ内張りボールミル１にて十分混合し、非晶質ガラス粉末およびフィラー粉末が均一に分散したスラリーを調製した。

【０１８７】

（２）グリーンシートの作製

続いて、スラリーを撹拌しながら減圧し、気泡を脱気しながら粘度を８０００～１３０００ｃｐｓに調整後、ドクターブレイド型キャスティング装置２を用いて、無加圧焼成で実施例２３の基板と同じ厚さとなるように、厚さが０．１４ｍｍのグリーンシート４を作製した。

【０１８８】

（３）セラミック多層配線基板の作製

得られたグリーンシート４の外形を切断し、所定寸法とした後、実施例２３と同様の方法にて、焼成後にピッチが０．３ｍｍとなるように貫通孔５１をあけ、スクリーン印刷法にて貫通孔５１にＣｕペーストを充填するとともに、グリーンシート４表面に配線パターン５２を形成した。

【０１８９】

つぎに、配線パターン５２を形成したグリーンシート４を、実施例２３と同様に５０枚積み重ね、温度：１３０℃、圧力：１５０ｋｇ／ｃｍ^{2}で圧着し一体化して、積層体４１を作製した。得られた積層体４１の寸法は約２２０ｍｍ角であり、厚さは約７ｍｍであった。

【０１９０】

続いて、実施例２３と同様の電気炉８を用いて、加圧をせず焼成を行った。すなわち、窒素雰囲気にて、あらかじめ設定した脱バインダに最適な速度で昇温を開始するとともに、炉内が結露しなくなる温度に達した時点で窒素と水蒸気の混合雰囲気とし、８００℃で２０～３０時間保持しながら脱バインダを行った。続いて、水蒸気を切り、窒素雰囲気とした後、再び昇温を開始し、９７０～１０２０℃の最高温度で１～３時間保持して、ガラスセラミック材料の気孔率が５％以下になり緻密化するようした。焼成工程での寸法変化は、ＸＹ平面方向で１８±０．２９％であり、厚さ方向の収縮率は２０％であった。

【０１９１】

（４）基板の評価

ここで、実施例２３と本比較例２とのプロセス特性および基板品質を比較すると、表５に示す通りであった。

【０１９２】

【表５】

実施例23と比較例2との比較（表5）

項　目	実施例23	比較例２
グリーンシート表面へのホウ酸結晶析出	無し	有
穴明けでの穴位置精度（最大値）	±１０μｍ以内	±３５μｍ
パターン印刷後のグリーンシート伸び	１５μｍ以内	２５μｍ
脱バインダ	８５０℃で２０時間以下	８００℃で３０時間以下
基板表面寸法精度	±０．０８％	±０．３５％
基板反り	≒３０μｍ	≒８０μｍ
配線の断線、ショート（発生件数／配線総数）	0	０．５％

【０１９３】
表５に示した評価結果から、実施例２３では、グリーンシート表面へのホウ酸析出が起こらず、孔明け時の位置精度が良く、かつ、グリーンシートの経時寸法変化が小さいため、配線の高密度化が容易で、短時間に容易に脱バインダでき、高密度配線を行なっても配線不良の無い、高寸法精度なガラス／銅多層配線基板が得られたことがわかる。
【０１９４】
なお、実施例２３では、高密度配線の一例として、０．３ｍｍピッチでのグリーンシートへの孔明けについて述べたが、より細いパンチピンの使用で配線基板として０．１５ｍｍピッチ程度の孔明けが可能である。さらに、実施例２３および本比較例２で述べた具体的数値は、材料組成、材料構成、基板寸法およびパターン構造、プロセス条件で変化するもので、特に限定されるものではない。また、ガラス材料およびバインダ材料についても、前述した好ましい材料組成範囲のガラス材料およびバインダ材料であれば、ほぼ実施例２３と同様のプロセス特性および基板品質を得ることができる。
【０１９５】
＜実施例２４～３７＞
本実施例２４～３７では、有機バインダが異なる以外は実施例２３と同様にして、セラミック多層配線基板を作製した。各実施例において合成した有機バインダのモノマ、分散安定剤（重合用分散剤）、可塑剤、バインダ調製用溶剤、および重合開始剤を、表６に示す。なお、表６において「番号」は実施例番号を示し、「開始剤」は重合開始剤を示す。

【０１９６】
【表６】

水系分散型バインダ組成　（表６）

番号	ビニル単量体(g)		重合用分散剤		可塑剤		溶剤(g)		開始剤
	n-BMA	n-BAA	化合物	添加量(g)	化合物	添加量(g)	水	IPA	APS(g)
24	300	0	PEO	21	DIDP	31.5	748	0	0.45
25	300	0	PEO	21	DIDP	31.5	711	37	0.45
26	300	0	PEO	21	DIDP	31.5	673	75	0.45
27	300	0	PEO	21	DIDP	31.5	598	150	0.45
28	300	0	PEO	21	DIDP	31.5	523	225	0.45
29	300	0	PEO	21	DIDP	31.5	449	299	0.45
30	300	0	PEO	21	DIDP	31.5	374	374	0.45
31	300	0	PEO	21	DIDP	24.0	523	225	0.45
32	300	0	PEO	21	DIDP	39.0	523	225	0.45
33	300	0	PEO	18	DIDP	31.5	523	225	0.45
34	300	0	PEO	24	DIDP	31.5	523	225	0.45
35	270	30	PEO	21	DIDP	31.5	523	225	0.45
36	240	60	PEO	21	DIDP	31.5	523	225	0.45
37	210	90	PEO	21	DIDP	31.5	523	225	0.45

【０１９７】
各実施例２４～３７において得られた配線基板は、実施例２３と同様の良好な基板であった。
【０１９８】
＜実施例３８＞
本実施例３８では、実施例２３で得たガラス／銅多層配線基板を用い、電子計算機用モジュールを作製した。その作製手順を、図２２を用いて説明する。
【０１９９】
始めに、ガラス／銅多層配線基板の焼結体１５８の表裏面に付着した異物を除去した後、表裏面を、グリーンシート焼成後の１枚相当分以下の厚さだけラッピングして除去し（図２２（ｇ））、さらに、表裏面を、必要な表面粗さとなるようポリッシュをしてから洗浄した。
【０２００】
続いて、基板１５８表面に、ポリイミド前駆体ワニスのスピン塗布により形成した塗膜を

乾燥ベークした後、３５０～４００℃の温度で硬化させて、保護皮膜のためのポリイミド絶縁膜を形成した。次に、基板１５８裏面に、入出力ピン１２接続用薄膜電極パッドを形成するため、基板１５８裏面全面にアルゴンガスによるスパッタエッチをした後、裏面全面にクロム、銅、クロムの順に連続スパッタ成膜し、フォトレジストをマスクとした連続ウェットエッチングを行った。このエッチングは、クロムにはアルカリ性過マンガン酸カリウム水溶液を、銅にはリン酸／硝酸系の混合液を、それぞれエッチャントとして用いた。その後、基板裏面に、表面と同様にして保護皮膜のための層間絶縁膜７１を形成した。

【０２０１】

続いて、基板１５８表面側に薄膜配線７１を以下の手順で形成した（図２２（ｈ））。最初に、基板１５８表面の保護皮膜を、酸素プラズマアッシャで除去してから、整合パッド、配線パターンおよび封止用パターンを形成するため、基板表面全面にアルゴンガスによるスパッタエッチをした後、基板表面全面にクロム、銅、クロムの順に連続スパッタ成膜し、フォトレジストをマスクとした連続ウェットエッチングを行った。つぎに、層間絶縁膜の形成および加工を行った。すなわち、ポリイミド前駆体ワニスのスピン塗布により形成した塗膜を乾燥ベークした後３５０～４００℃の温度で硬化させ、この表面にレジストパターンを形成した後エッチングして所定のパターンに加工した。加工は、ヒドラジン－エチレンジアミン系の混合液を用いた。以上の配線パターン形成および層間絶縁膜形成を繰り返して、必要な薄膜配線層７１を形成した。これにより、薄膜・厚膜複合多層配線基板１７が得られた。

【０２０２】

つぎに、はんだ接続用薄膜電極パッドを形成した。まず、基板１７表面に、クロムまたはチタン、続いて銅またはニッケルまたは銅／ニッケル合金またはニッケル／タングステン合金を連続スパッタ成膜し、この上にレジストパターンを形成し、上層から順にエッチングしてはんだ接続用薄膜電極パッドを形成した。ここで、銅、ニッケル、銅／ニッケル合金はリン酸／硝酸系の混合液エッチャントで、ニッケル／タングステン合金はフッ酸／硝酸系の混合液エッチャントで、チタンはアンモニア／過酸化水素系エッチャントで加工した。次に、この電極パッド表面に金をめっきした。同様に封止用パターン表面にも金をめっきした。

【０２０３】

続いて、基板１７裏面の保護膜を酸素プラズマアッシャで除去し、Ａｕ－Ｓｎ２０ｗｔ％共晶合金（融点２８０℃）のろう材がヘッド部に固着させてある入出力ピン１２を、カーボン製の位置決め治具を用い、金属層が酸化しない雰囲気でろう材の融点以上の温度でリフローすることによって、基板１７裏面にろう付けした。同様にして、融点の異なるはんだ材のハンダバンプを介してチップキャリア１１をはんだ付けし、続いて冷却フィン１５を組み合わせた後さらに融点の異なるはんだを用いて水冷ジャケット１６をはんだ付けをした。これにより、図２２（ｉ）に示す電子計算機用モジュール６１が得られた。

【０２０４】

以上により得られたモジュール６１を複数個用意し、それぞれコネクタ１８を介して多層プリント基板６３に搭載することで、命令プロセッサ１８５を作製し、この命令プロセッサ１８５を複数個使用して大型電子計算機を作製した。

【０２０５】

その結果、従来の方法、例えばムライトセラミックスとタングステン導体からなるムライト多層配線基板（配線ピッチ０．４５ｍｍ）を用いて製作された大型電子計算機と比べ、約３倍の演算速度が達成できた。

【０２０６】

なお、実施例２３で得られたガラス／銅多層配線基板は本実施例３８で作製したような電子計算機だけでなく、高密度配線および高速演算が要求される電子回路装置に適用できる。

【０２０７】

【発明の効果】

以上説明したように、本発明により、脱バインダが容易で、緻密化焼結し易く、基板特性として、熱膨張係数はシリコンの熱膨張係数と整合し、曲げ強度は十分大きく、比誘電率は十分小さい配線基板が得られる。特に、本発明の組成物はガラスの軟化温度が８５０～１１００℃と高いため、脱バインダ熱処理による焼結収縮が起こり難く、少ないフィラー添加で脱バインダ可能となり、短時間の焼成で緻密化焼結できる。また、本発明のセラミック組成物および該組成物に含まれるガラスは、耐水性が高く、グリーンシート上に硼酸結晶が析出し難く、しかも、本発明のセラミック組成物は熱処理によっても硼珪酸ガラスからクリストバライト結晶が析出せず、好ましい。従って、本発明によれば、配線基板の生産性を格段に向上させることができる。

【０２０８】

また、本発明によれば、

（ａ）耐水性良好な高軟化点ガラス、

（ｂ）熱分解性良好で、グリーンシートへ高位置精度の孔加工ができる水系分散型バインダ、

（ｃ）高寸法精度で基板を焼結できる加圧焼結、

の３要素の組み合せにより、高配線密度かつ高寸法精度で、基板表面に薄膜を形成するのに適したガラス／銅多層配線基板と、該基板を備える電子回路装置、電子計算機用モジュール、および電子計算機とを製造することができる。

【０２０９】

例えば、（ａ）の耐水性良好な高軟化点ガラスを用いることにより、グリーンシート表面へのホウ酸析出が回避され、また、高温での脱バインダが可能になる。（ｂ）のバインダを用いることにより、安全な水系溶剤を用いることができる。また、（ｃ）の加圧焼結を行なうことにより、グリーンシートへの高位置精度での孔加工が可能になるとともに、グリーンシートの寸法変化が抑制されるため、高寸法精度なガラス／銅多層配線基板を作製することができ、高密度配線が実現される。さらに、この加圧焼結により、脱バインダ時間が短縮される。これにより、（ａ）の高軟化点ガラスを用いても、脱バインダに過度の時間がかかることを回避できる。

【０２１０】

さらに、本発明では、水系分散型バインダを用いることで環境対策もでき、高軟化点ガラスを用いることで脱バインダ時間が短縮できるので低コストで基板が製造することができる。

【図面の簡単な説明】

【図１】　本発明の非晶質ガラスの組成域を表す$SiO_2-B_2O_3-R_2O$３成分系三角組成図である。

【図２】　多層配線基板の製造工程を示す説明図である。

【図３】　B_2O_3等溶出曲線を示した$SiO_2-B_2O_3-K_2O$３成分系三角組成図である。

【図４】　$SiO_2-B_2O_3-K_2O-Al_2O_3$系ガラスの$B_2O_3$溶出量と$Al_2O_3/K_2O$のモル比との関係を示すグラフである。

【図５】　$SiO_2-B_2O_3-K_2O-Al_2O_3$系ガラスの軟化温度と$Al_2O_3/K_2O$のモル比との関係を示すグラフである。

【図６】　$SiO_2-B_2O_3-K_2O-Al_2O_3$系ガラスのクリストバライト析出性と$Al_2O_3/K_2O$のモル比との関係を示すグラフである。

【図７】　図７（ａ）は$SiO_2-B_2O_3-R_2O$系ガラスの構造モデルを示す説明図である。

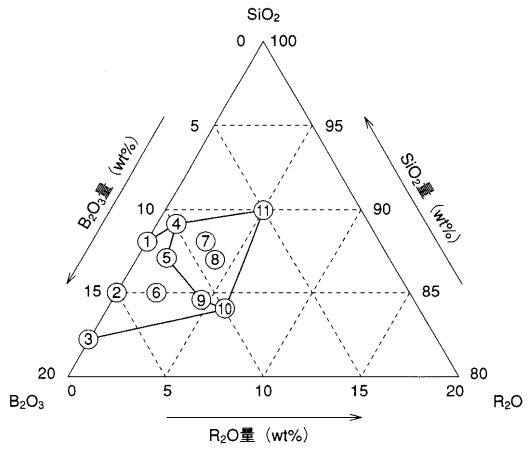
図７（ｂ）は$SiO_2-B_2O_3-R_2O$系ガラスにAl_2O_3成分を追加した場合の構造変化を示す説明図である。

【図８】　図８（ａ）は$SiO_2-B_2O_3-R_2O$系ガラスを高温に加熱した場合の構造変化を示す説明図である。図８（ｂ）は$SiO_2-B_2O_3-R_2O-Al_2O_3$系ガラスを高温に加熱した場合の構造変化を示す説明図である。

【図９】　$SiO_2-B_2O_3-ZnO$系ガラスのB_2O_3溶出量とＺｎＯ添加量との関係を示すグラフである。
【図１０】　脱バインダ温度と脱バインダ時間との関係を示すグラフである。
【図１１】　ガラスの軟化温度と脱バインダに必要なフィラー量との関係を示すグラフである。
【図１２】　ガラス－フィラー系組成物の緻密化焼結温度と、フィラー量およびガラス軟化温度との関係を示すグラフである。
【図１３】　ガラス－フィラー系組成物の焼結収縮カーブを示すグラフである。
【図１４】　ガラス－フィラー系焼結体の曲げ強度とフィラー量との関係を示すグラフである。
【図１５】　実施例２２の多層配線基板の断面図である。
【図１６】　実施例２２のＬＳＩとＩ／Ｏピンを搭載した多層配線基板の断面図である。
【図１７】　実施例２２の命令プロセッサ・モジュールの部分断面図である。
【図１８】　実施例２２の電子計算機のシステム構成図である。
【図１９】　B_2O_3等溶出曲線を示した$SiO_2-B_2O_3-Na_2O$３成分系三角組成図である。
【図２０】　加圧焼結における、印加された圧力と、基板の平面方向および厚さ方向の寸法変化との関係を示すグラフである。
【図２１】　加圧焼結における、フィラー量と、印加された圧力と、焼結温度と、相対密度との関係を示すグラフである。
【図２２】　電子計算機用モジュールの製造工程を示す説明図である。
【図２３】　電子計算機用モジュールの構造を示す部分断面斜視図である。
【図２４】　命令プロセッサの構造を示す斜視図である。
【符号の説明】
１…ボールミル装置、２…スラリー、３…キャスティングマシン、４…グリーンシート、５…ポンチ、６…スキージ、７…ペースト、８…加熱炉、９…ビアホール、１０…配線、１１…ＬＳＩ、１２…Ｉ／Ｏ（入出力）ピン、１３および１４…接続ろう材、１５…マイクロフィン、１６…水冷ジャケット、１７…多層配線基板、１８…コネクタ、４１…積層体、５１…貫通孔、５２…配線、５３…ビアホール、６１…モジュール、６２…水パイプ、６３…多層プリント基板、７１…薄膜配線層、１５８…ガラスセラミック焼結体、１８１…主記憶装置、１８２…拡張記憶装置、１８３…システム制御装置、１８４…入出力プロセッサ、１８５…命令プロセッサ。

【図１】

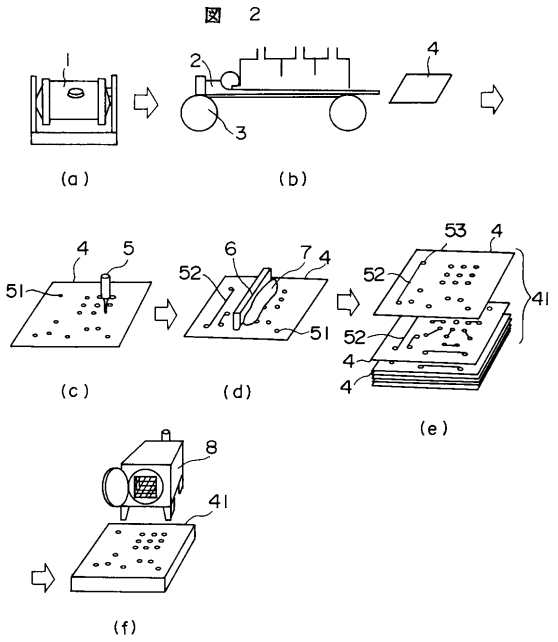
図 1



SiO_2－B_2O_3－R_2O　3成分系ガラス組成図

【図２】

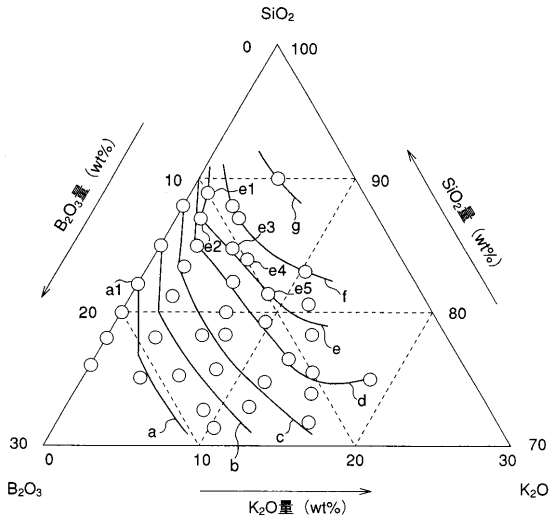
図 2



多層回路基板の製造工程

【図３】

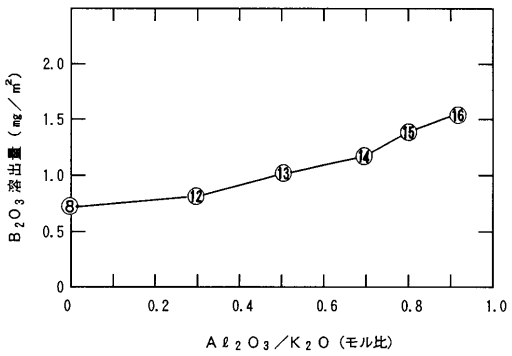
図 3



SiO_2－B_2O_3－K_2O　3成分系組成ガラスにおける
等B_2O_3溶出曲線

【図４】

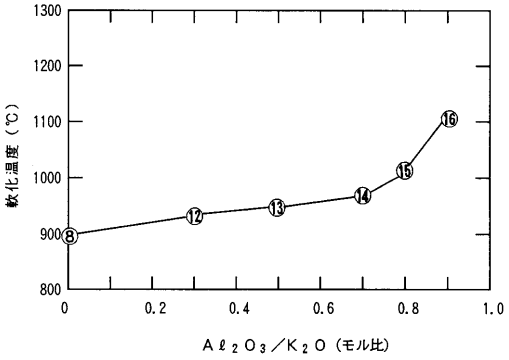
図 4



SiO_2－B_2O_3－K_2O－Al_2O_3系ガラスのB_2O_3溶出量と
Al_2O_3／K_2O（モル比）との関係

【図５】

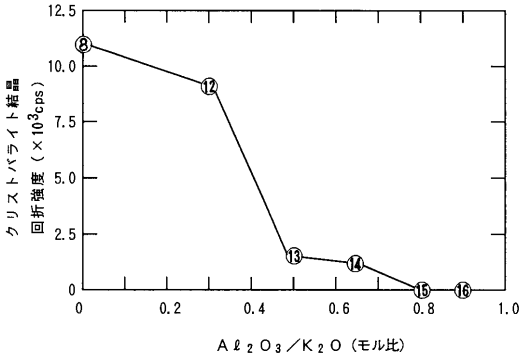
図 5



$SiO_2-B_2O_3-K_2O-Al_2O_3$系ガラスの軟化温度と$Al_2O_3/K_2O$（モル比）との関係

【図６】

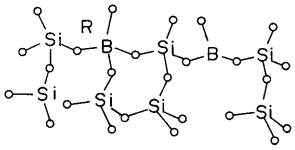
図 6



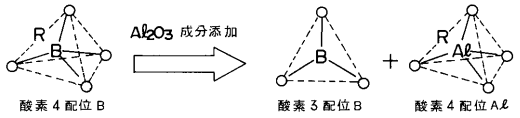
$SiO_2-B_2O_3-K_2O-Al_2O_3$系ガラスのクリストバライト結晶析出性と$Al_2O_3/K_2O$（モル比）との関係

【図７】

図 7



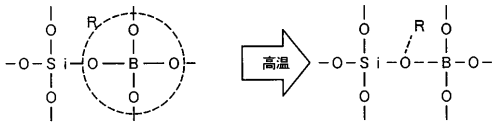
(a) SiO2-B2O3-R2O 系ガラスの構造モデル



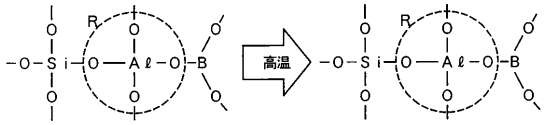
(b) SiO2-B2O3-R2O 系ガラスにAl_2O_3成分を添加した場合の構造変化モデル

【図８】

図 8



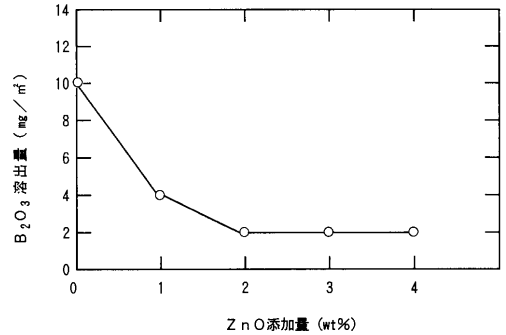
(a) $SiO_2-B_2O_3-R_2O$系ガラスの高温における構造モデル



(b) $SiO_2-B_2O_3-R_2O-Al_2O_3$系ガラスの高温における構造モデル

【図９】

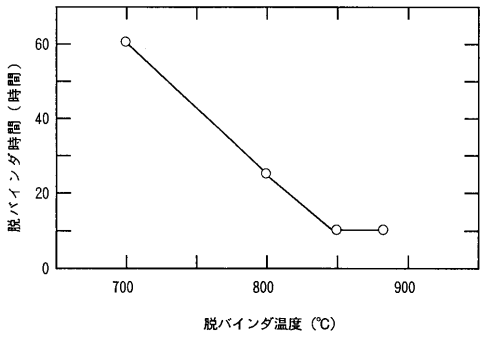
図 9



$SiO_2-B_2O_3-ZnO$系ガラスのB_2O_3溶出量とZnO量との関係

【図１０】

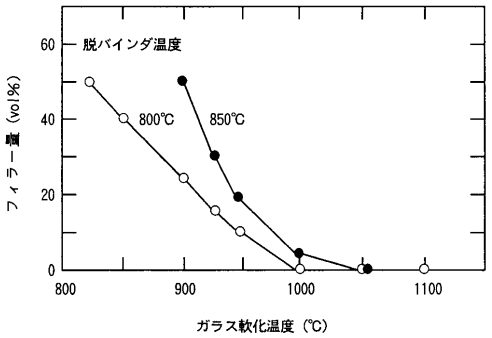
図１０



脱バインダのための熱処理温度と熱処理時間との関係

【図１１】

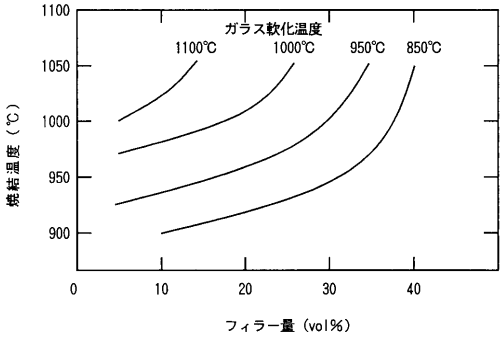
図１１



ガラスの軟化温度と脱バインダに必要なフィラー量との関係

【図１２】

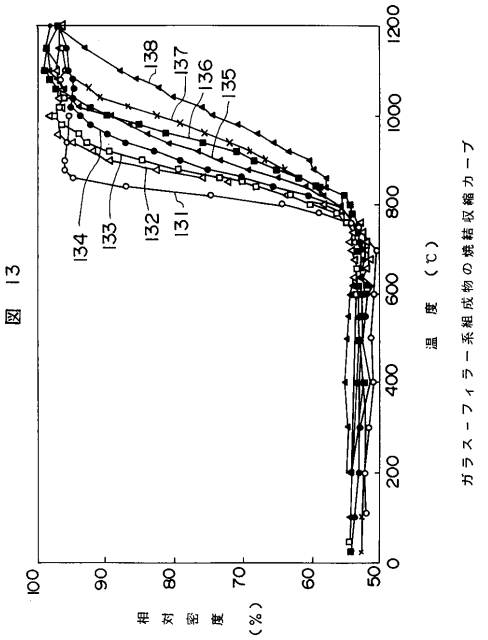
図１２



ガラスーフィラー系組成物の緻密化焼結に要する熱処理温度とフィラー量及びガラス軟化温度との関係

【図１３】

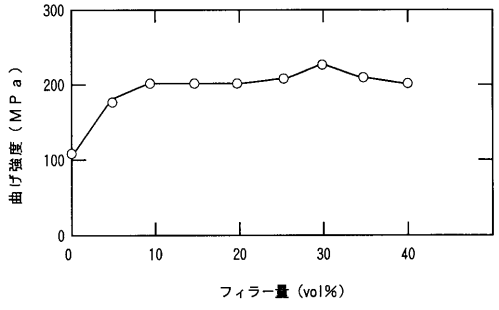
図 13



ガラス－フィラー系組成物の焼結収縮カーブ

【図１４】

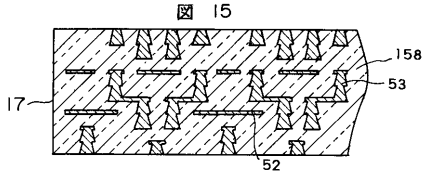
図14



ガラスーフィラー系焼結体の曲げ強度とフィラー量との関係

【図１５】

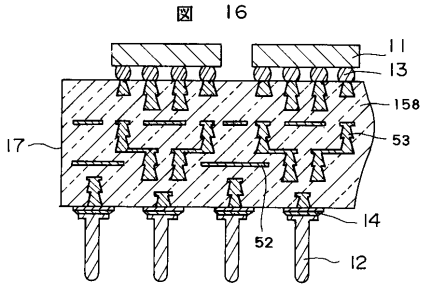
図 15



多層回路基板の断面

【図１６】

図 16



ＬＳＩとＩ／Ｏピンを搭載した多層回路基板の断面図

【図１７】

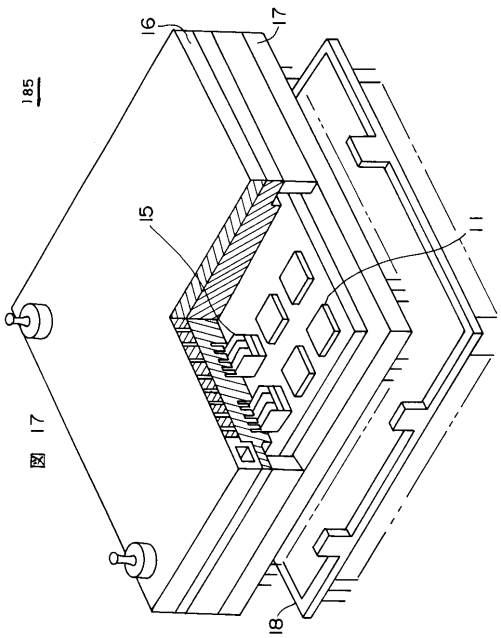
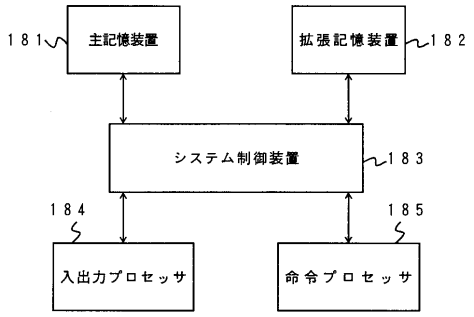


図 17

【図１８】

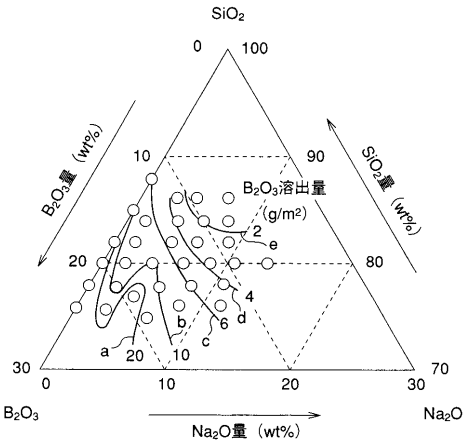
図18



電子計算機のシステム構成

【図１９】

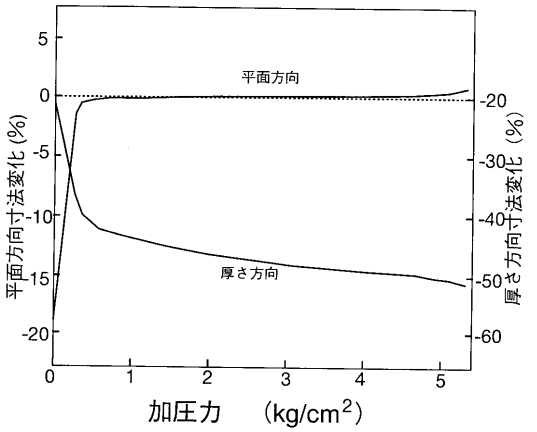
図 19



SiO_2—B_2O_3—Na_2O　3成分系組成ガラスにおける
等B_2O_3溶出曲線

【図２０】

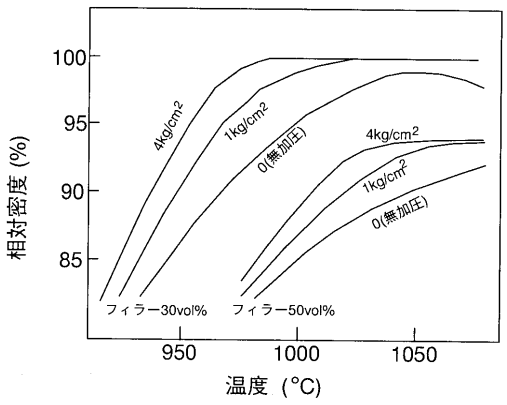
図20



加圧力と寸法精度の関係

【図２１】

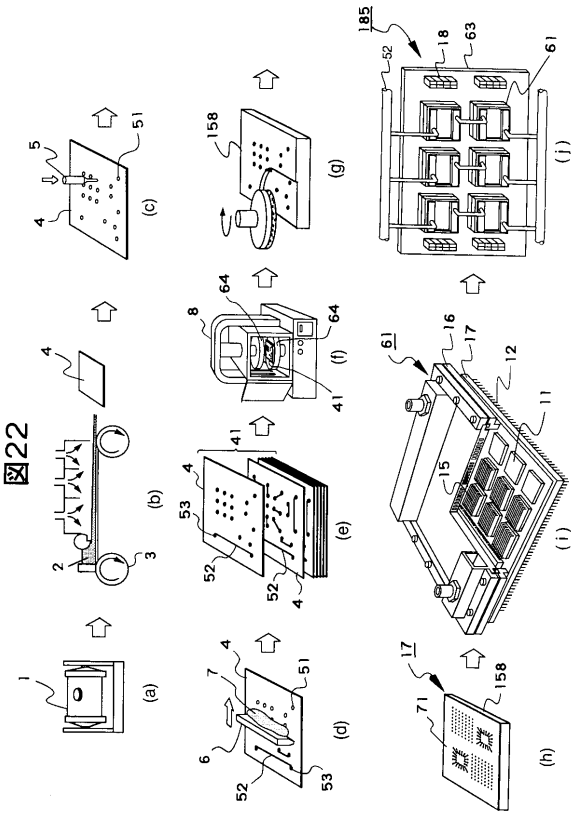
図21



フィラー量と焼結温度,加圧力及び相対密度の関係

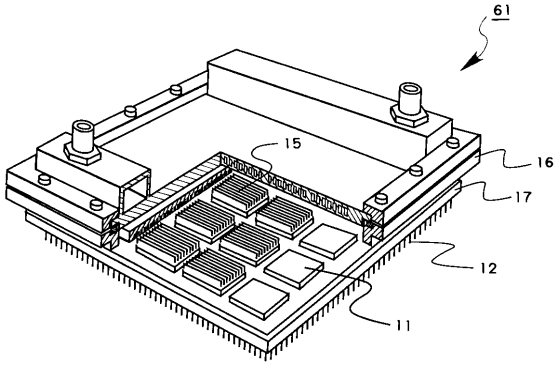
【図２２】

図22



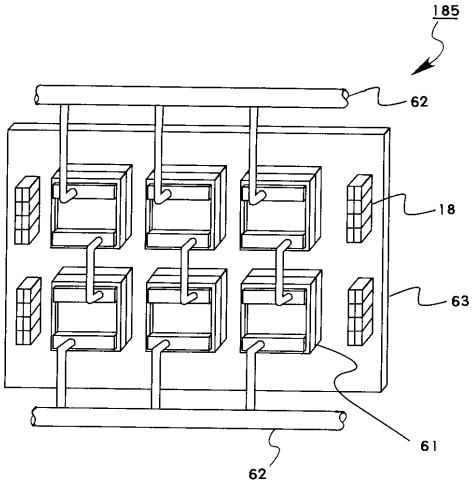
【図２３】

図23



【図２４】

図24



フロントページの続き

(72)発明者　種井　平吉
神奈川県横浜市戸塚区吉田町２９２番地　株式会社日立製作所　生産技術研究所内
(72)発明者　岩永　昭一
神奈川県横浜市戸塚区吉田町２９２番地　株式会社日立製作所　生産技術研究所内
(72)発明者　庄子　房次
神奈川県横浜市戸塚区吉田町２９２番地　株式会社日立製作所　生産技術研究所内
(72)発明者　勝村　宣仁
神奈川県横浜市戸塚区吉田町２９２番地　株式会社日立製作所　生産技術研究所内
(72)発明者　佐藤　了平
神奈川県横浜市戸塚区吉田町２９２番地　株式会社日立製作所　生産技術研究所内
(72)発明者　小林　二三幸
神奈川県秦野市掘山下１番地　株式会社日立製作所　汎用コンピュータ事業部内
(72)発明者　田上　文一
神奈川県秦野市掘山下１番地　株式会社日立製作所　汎用コンピュータ事業部内
(72)発明者　千石　則夫
神奈川県秦野市掘山下１番地　株式会社日立製作所　汎用コンピュータ事業部内
(72)発明者　矢木　邦博
神奈川県秦野市掘山下１番地　株式会社日立製作所　汎用コンピュータ事業部内
(72)発明者　中村　真人
神奈川県横浜市戸塚区吉田町２９２番地　株式会社日立製作所　生産技術研究所内
(72)発明者　森田　耕策
神奈川県横浜市戸塚区吉田町２９２番地　株式会社日立製作所　生産技術研究所内
(72)発明者　藤田　毅
神奈川県秦野市掘山下１番地　株式会社日立製作所　汎用コンピュータ事業部内

審査官　三崎　仁

(56)参考文献　特開平０５－２８３２７２（ＪＰ，Ａ）
特開昭６３－２１５５６０（ＪＰ，Ａ）
特開平０４－２４３９６３（ＪＰ，Ａ）
特開平０３－２５７０４１（ＪＰ，Ａ）

(58)調査した分野(Int.Cl.^{7}，ＤＢ名)
C04B35/00～35/22
H01B3/00～3/12