

(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
2024年10月31日(31.10.2024)



(10) 国際公開番号

WO 2024/225208 A1

(51) 国際特許分類:

C01B 21/064 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2024/015665

(22) 国際出願日: 2024年4月22日(22.04.2024)

(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 2023-073727 2023年4月27日(27.04.2023) JP

(71) 出願人: 株式会社 トクヤマ (TOKUYAMA CORPORATION) [JP/JP]; 〒7458648 山口県周南市御影町1番1号 Yamaguchi (JP).

(72) 発明者: 台木 祥太(DAIKI, Shota); 〒7458648 山口県周南市御影町1番1号 株式会社 トクヤマ内 Yamaguchi (JP). 吉田 悟(YOSHIDA, Satoru); 〒7458648 山口県周南市御影町1番1号 株式会社 トクヤマ内 Yamaguchi (JP).

(74) 代理人: 弁理士法人 H A R A K E N Z O W O R L D P A T E N T & T R A D E M A R K (HARAKENZO WORLD PATENT & TRADEMARK); 〒5300041 大阪府大阪市北区天神橋2丁目北2番6号 大和南森町ビル Osaka (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, 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, MG, MK, MN, MU, 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, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, ME, 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))

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING HEXAGONAL BORON NITRIDE POWDER, AND HEXAGONAL BORON NITRIDE POWDER

(54) 発明の名称: 六方晶窒化ホウ素粉末の製造方法および六方晶窒化ホウ素粉末

(57) Abstract: Provided is a hexagonal boron nitride powder containing less foreign matters than conventional products. Provided is a method for producing a hexagonal boron nitride powder, the method including: a magnetic separation step for removing magnetized foreign matters by magnetic separation from a crude hexagonal boron nitride powder; an oxidation step for reducing the content of organic components by oxidation; an acid washing step for removing acid-soluble impurities by acid washing; and a firing step for obtaining the hexagonal boron nitride powder by firing.

(57) 要約: 従来よりも異物が少ない六方晶窒化ホウ素粉末を実現する。六方晶窒化ホウ素粉末の製造方法であって、粗六方晶窒化ホウ素粉末から磁選処理により着磁性異物を除去する磁選工程と、酸化処理により有機成分の含有量を低減する酸化処理工程と、酸洗浄により酸可溶不純物を除去する酸洗浄工程と、焼成して六方晶窒化ホウ素粉末を得る焼成工程と、による処理を含む。



WO 2024/225208 A1

明 細 書

発明の名称：

六方晶窒化ホウ素粉末の製造方法および六方晶窒化ホウ素粉末

技術分野

[0001] 本発明は、六方晶窒化ホウ素粉末の製造方法および六方晶窒化ホウ素粉末に関する。

背景技術

[0002] 六方晶窒化ホウ素は、電気絶縁性、熱伝導性、および熱的安定性等に優れており、様々な分野において素材として使用されている。素材として六方晶窒化ホウ素を用いる際に、六方晶窒化ホウ素の特性を高い水準で発揮させる観点から、異物が少ない六方晶窒化ホウ素粉末を用いることが望ましい。特に、炭素および金属元素を含有する有色異物は導電性を有し得るため、六方晶窒化ホウ素粉末から高度に除去されることが求められている。

[0003] このような状況下、特許文献1に記載には、炭素を含む有色粒子の個数が10gあたり50個以下である、六方晶窒化ホウ素が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：国際公開第2022/071245号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 特許文献1に記載の六方晶窒化ホウ素粉末は、10gオーダーでの有色粒子の個数を検討している。しかしながら、10gオーダーでは見過ごされ得る量の異物についても問題となる場合がある。そのため、特許文献1の開示よりも、異物がさらに少ない六方晶窒化ホウ素粉末が求められている。

[0006] 本発明の一態様は、従来よりも異物が少ない六方晶窒化ホウ素粉末を実現することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0007] 上記の課題を解決するために、本発明の一態様に係る六方晶窒化ホウ素粉末の製造方法は、粗六方晶窒化ホウ素粉末に対して、

- (1) 磁選処理により着磁性異物を除去する、磁選工程、
- (2) 300℃以上、700℃以下の条件での酸化処理により有機成分の含有量を低減する、酸化処理工程、
- (3) 酸洗浄により酸可溶不純物を除去する、酸洗浄工程、および
- (4) 1800℃以上2050℃以下の条件で焼成する、焼成工程、を含む処理を行い、

前記(2)の前記酸化処理工程および前記(3)の前記酸洗浄工程による処理は、前記(4)の前記焼成工程による処理より前に行うことを特徴とする六方晶窒化ホウ素粉末の製造方法である。

[0008] また、上記の課題を解決するために、本発明の一態様に係る六方晶窒化ホウ素粉末は、六方晶窒化ホウ素粒子を含み、輝度が110以下であり、粒径が50 μ m以上である有色異物の個数が1kgあたり30個以下である、六方晶窒化ホウ素粉末である。

発明の効果

[0009] 本発明の一態様によれば、従来よりも異物が少ない六方晶窒化ホウ素粉末を実現することができる。

発明を実施するための形態

[0010] 以下、本発明の一実施形態について、詳細に説明する。本明細書において、数値範囲を表す「A～B」は、特記しない限り「A以上B以下」を意図する。

[0011] [六方晶窒化ホウ素粉末の製造方法]

以下、本発明の一実施形態である六方晶窒化ホウ素粉末の製造方法について、詳細に説明する。本実施形態に係る六方晶窒化ホウ素粉末の製造方法は、粗六方晶窒化ホウ素粉末から六方晶窒化ホウ素粉末を製造する方法であり、磁選工程、酸化処理工程、酸洗浄工程、および焼成工程による処理を含む

。また、本発明の一実施形態は、粗六方晶窒化ホウ素粉末を出発原料とするが、前記各工程において、前工程で処理された粗六方晶窒化ホウ素粉末を更に処理する場合もある。そのため、前記各工程において処理される六方晶窒化ホウ素粉末を、「被処理六方晶窒化ホウ素粉末」と称することもある。

[0012] (粗六方晶窒化ホウ素粉末)

粗六方晶窒化ホウ素粉末は、異物が除去されていない状態の六方晶窒化ホウ素粒子の粉末である。粗六方晶窒化ホウ素粉末は特に限定されず、任意の方法によって得られたものを用いてもよい。本明細書において、「粗六方晶窒化ホウ素粉末に含まれる異物」とは、六方晶窒化ホウ素粒子とは異なる粒子などの物体、六方晶窒化ホウ素粒子の表面に付着した六方晶窒化ホウ素粒子とは異なる成分、または六方晶窒化ホウ素の凝集体に含まれる六方晶窒化ホウ素とは異なる成分もしくは粒子などを指す。粗六方晶窒化ホウ素粉末に含まれる異物として、有色異物が挙げられる。

[0013] 本明細書において、「有色異物」とは、粒径が $50\mu\text{m}$ 以上である有色の物体を指す。有色の物体は、六方晶窒化ホウ素粒子とは異なる成分により着色された粒子などの物体、または六方晶窒化ホウ素粒子とは異なる粒子そのものを指す。本明細書において、「有色」とは、黒を0、白を255とする256階調のグレースケール画像データにおいて、輝度が110以下であることを指す。すなわち、有色異物とは、粗六方晶窒化ホウ素粉末を被写体として含む256階調のグレースケール画像データにおいて、輝度が110以下である物体のことを指す。有色異物には、着磁性異物、有機成分、および酸可溶不純物が含まれるが、これに限定されない。有色異物は任意の方法によって判定すればよく、例えば従来公知の粉末中の有色異物を検査する異物検査機によって判定することができる。

[0014] 着磁性異物は、磁性を有する異物を指し、その他の特徴は特に限定されない。例えば、着磁性異物として、Co、Cr、Cu、Fe、Mg、Mn、Ni、Ti、Zn、およびAl元素などを含む異物が挙げられる。これらの元素は、粗六方晶窒化ホウ素粉末またはその製造装置に含有されることが多い

。

[0015] 有機成分は、炭素を含有する異物を指し、その他の特徴は特に限定されない。有機成分は、粗六方晶窒化ホウ素粉末の原料に含まれる炭素に由来する成分であってもよく、例えばカーボン源または含炭素ホウ素化合物に由来する成分であってもよい。

[0016] 酸可溶不純物は、酸に可溶な異物を指し、その他の特徴は特に限定されない。例えば、酸可溶不純物として、粗六方晶窒化ホウ素粉末の製造の際に、副産物として生じた酸化ホウ素－酸化カルシウムから成る複合酸化物等の不純物が挙げられる。

[0017] 着磁性異物、有機成分、および酸可溶不純物の多くは有色異物である。このため、これらの有色異物は、下記に示す磁選工程、酸化処理工程、および酸洗浄により、除去される。なお、有色異物でない着磁性異物、有機成分、および酸可溶不純物も、有色異物と同様に各工程において除去してもよい。有色異物は、導電性を有することもあるため、特に六方晶窒化ホウ素粉末を絶縁シートに適用する際には、高度に低減されていることが好ましい。

[0018] (磁選工程)

磁選工程は、被処理六方晶窒化ホウ素粉末から磁選処理により着磁性異物を除去する。磁選処理は50kg/h以下の処理量が好ましく、40kg/h以下の処理量であることが特に好ましい。磁選処理の処理量が上限値を上回らないことで、着磁性異物を高度に除去することができる。磁選処理の処理量の値は小さければ小さいほど、着磁性異物を除去する精度が高くなる。一方、処理効率の観点から、磁選処理の処理量は0.5kg/h以上の処理量であってもよく、2kg/h以上の処理量であることが特に好ましい。磁選処理は、磁極部を有する電磁篩装置を用いて実施してもよい。当該磁選工程により、粗六方晶窒化ホウ素粉末から着磁性異物が除去された六方晶窒化ホウ素粉末を得ることができる。

[0019] 磁選工程による処理は、本発明の一実施形態に係る製造方法において、いずれの工程の前後で行ってもよいが、最初の工程として行うことが好ましい

。

[0020] 電磁篩装置の磁極部の条件は下記の通りであってもよい。なお、下記に磁極部面積およびスクリーンの磁力の下限値を示すが、磁極部面積および磁力は大きいほど、着磁性異物を除去する磁選の効果は高いことから、磁力および磁極部面積の上限値は限定されない。

[0021] 目開き：5 mm以下×8 mm以下

磁極部面積：30 cm²以上

スクリーン磁力：1.2 T以上

スクリーン枚数：20枚以上

スクリーンの形状：メッシュ状の平板形状

スクリーンの例：電流によって1.2 T以上に磁化される電磁石

電磁篩装置は、スクリーンを特定の間隔で20枚以上重ねて用いることができる装置である。電磁篩装置は、例えば縦長の円筒形装置の内側側壁に前記スクリーンを保持する突起を備え、すべてのスクリーンをセットした後、上部から粉末を投入した後、装置全体が振動することにより、前記粉末が重力により落下し、すべてのスクリーンを通過することにより磁選を行う装置である。スクリーンの枚数は多いほど、着磁性異物を除去する磁選の効果は高いことから、枚数の上限値は限定されないが、生産効率を考慮すると45枚以下であることが好ましい。

[0022] (酸化処理工程)

酸化処理工程は、被処理六方晶窒化ホウ素粉末から、酸化処理により有機成分の含有量を低減する。当該酸化処理工程により、有機成分を低減した六方晶窒化ホウ素粉末を得ることができる。酸化処理は、300℃以上の条件で行われてもよく、400℃以上の条件で行われることが好ましい。酸化処理の温度条件が下限値を下回らないことで、有機成分を高度に低減することができる。また、酸化処理工程は、700℃以下の条件で行われてもよく、680℃以下の条件で行われることが好ましい。酸化処理の温度条件が上限値を上回らないことで、六方晶窒化ホウ素の粒子そのものの構造および形態

などの特性に影響を与えることなく、有機成分を低減することができる。

[0023] 酸化処理の処理時間は、有機成分の含有量を好適に低減する観点から、2時間以上であることが好ましく、3時間以上であることがより好ましい。また、酸化処理の処理時間の上限値は特に限定されないが、処理効率を考慮すると、10時間以下であることが好ましく、8時間以下であることがより好ましい。

[0024] 酸化処理工程による処理は、本発明の一実施形態に係る製造方法において、焼成工程の前であれば、その順序は特に制限されるものではないが、磁選工程の後に行うことが好ましい。

[0025] (酸洗浄工程)

酸洗浄工程は、被処理六方晶窒化ホウ素粉末から、酸洗浄により酸可溶不純物を除去する。六方晶窒化ホウ素粉末の酸洗浄の方法は特に制限されず、公知の方法が制限無く採用されてよい。例えば、被処理六方晶窒化ホウ素粉末を容器に投入し、被処理六方晶窒化ホウ素粉末の5～10倍量の希塩酸（5～10質量％HCl）を加え、4～8時間接触させる方法などが挙げられる。酸洗浄時に使用する酸としては、塩酸の他、硝酸、硫酸、および酢酸等を用いることも可能である。

[0026] 酸洗浄の後、残存する酸を洗浄する目的で、純水を使用した水洗浄を行ってもよい。水洗浄の方法としては、酸洗時の酸をろ過した後、使用した酸と同量の純水に酸洗した六方晶窒化ホウ素粉末を分散させ、再度ろ過してよい。

[0027] 酸洗または水洗浄後において、含水塊状物の乾燥を実施してもよい。乾燥条件としては、例えば50～250℃の大気中、減圧下、または真空中であってもよい。乾燥時間は、特に指定しないが、含水率が0％に限りなく近づくまで乾燥することが好ましい。

[0028] 酸洗浄工程による処理は、本発明の一実施形態に係る製造方法において、焼成工程の前であれば、その順序は特に制限されるものではないが、前記酸化処理工程の後に行うことが好ましい。

[0029] (焼成工程)

焼成工程は、被処理六方晶窒化ホウ素粉末を焼成する工程である。焼成における加熱温度は、 1800°C 以上 2050°C 以下であってもよく、 1900°C 以上 2000°C 以下であることが好ましい。焼成における加熱温度が当該範囲内であることにより、 1900°C 以下の沸点の有色異物を揮散させることができる。このため、有色異物を低減できる。また、焼成工程の処理を前記酸化処理工程および酸洗浄工程の後に行うことにより、酸化または酸洗で表面の結晶性が低下した、六方晶窒化ホウ素粉末の結晶性を向上させることができる。

[0030] 焼成が行われる窒素を含むガス雰囲気下とは、例えば、窒素および酸素を含む雰囲気であってよい。焼成における反応系への窒素源の供給は、反応系への窒素源の供給は、公知の手段によって形成することができる。また、使用する窒素源としては、窒素ガスに限らず、窒化が可能なガスであれば特に制限されない。具体的には、窒素ガスの他、アンモニアガスを使用することも可能である。また、窒素ガス、アンモニアガスに、水素、アルゴン、およびヘリウム等の非酸化性ガスを混合して使用することも可能である。

[0031] 以上に示す焼成は、反応雰囲気制御の可能な公知の反応装置を使用して行うことができる。例えば、高周波誘導加熱やヒーター加熱により加熱処理を行う雰囲気制御型高温炉が挙げられ、バッチ炉の他、プッシャー式トンネル炉および竪型反応炉等の連続加熱炉も使用可能である。

[0032] 上述のように、磁選工程、酸化処理工程、酸洗浄工程、および焼成工程を含む六方晶窒化ホウ素粉末の製造方法は、粗六方晶窒化ホウ素粉末から工程ごとに特性の異なる異物を高い精度で除去することができる。このため、当該製造方法によれば、kgオーダーで有色異物が少ない六方晶窒化ホウ素粉末を得ることができる。

[0033] (吸引除去工程)

吸引除去工程は、被処理六方晶窒化ホウ素粉末に含まれる有色異物をカメラにより取得された画像データに基づいて判定し、判定された有色異物を吸

引によって除去する工程である。有色異物は、輝度が110以下であり、粒径が50 μ m以上であってよい。

[0034] 吸引除去工程において、まず、カメラにより、六方晶窒化ホウ素粉末について、黒を0、白を255とする256階調のグレースケール画像データを取得する。次に、取得されたグレースケール画像データ中、輝度が110以下であり、粒径が50 μ m以上の異物を特定し、これを有色異物として判定する。六方晶窒化ホウ素粉末を被写体として含む画像データを取得するカメラは、上記の機能を実現できる構成であれば特に限定されない。また、グレースケール画像データから有色異物を判定する構成も、上記の機能を実現できる構成であれば特に限定されない。例えば、任意の画像処理装置を用いて有色異物を判定してもよい。

[0035] 有色異物は、吸引によって六方晶窒化ホウ素粉末から除去される。吸引するための構成は特に限定されない。吸引除去工程に供される六方晶窒化ホウ素粉末は異物が少ないものであることが好ましい。例えば、除去吸引工程に供される六方晶窒化ホウ素粉末は、粒径が50 μ m以上である有色異物の個数は、1kgあたり50個以下であってもよく、30個以下であることがより好ましい。また、例えば、吸引除去工程に供される六方晶窒化ホウ素粉末は、下記式(1)により算出される白色度Wが93以上であることが好ましく、95以上であることがより好ましい。

[0036]
$$W = 100 - [(100 - L)^2 + a^2 + b^2]^{1/2} \cdots (1)$$

式(1)中、L、a、bは、L*a*b*表色系に基づくL*値、a*値、b*値である。L*a*b*表色系におけるそれぞれの値は、例えば色彩・色差計を用いて、JIS Z 8722に記載の公知の方法により測定することが可能である。

[0037] 吸引除去工程において、判定された有色異物は、周りの六方晶窒化ホウ素粉末と一緒に吸引される。このため、白色度Wが下限値を下回る六方晶窒化ホウ素粉末、または有色異物の個数が上限値を上回る六方晶窒化ホウ素粉末は、吸引除去工程において吸引される有色異物の個数が多くなるため、吸引

除去による六方晶窒化ホウ素粉末の損失が大きくなる。よって、白色度Wが十分に高い、または有色異物数が十分に少ない六方晶窒化ホウ素粉末、即ち、少なくとも前記磁選工程、酸化処理工程、および酸洗浄工程による処理を経たものを吸引除去工程に供することで、六方晶窒化ホウ素粉末の損失を小さくすることができる。

[0038] 吸引除去工程における処理量は特に限定されない。例えば、吸引除去工程における処理量は、 15 kg/h 以下の処理量であり、 10 kg/h 以下の処理量であることが特に好ましい。吸引除去工程の処理量が上限値を上回らないことで、有色異物を高度に除去することができる。吸引除去工程の処理量は値が小さければ小さいほど、有色異物を除去する精度が高くなる。一方、処理効率の観点から、吸引除去工程の処理量は 0.1 kg/h 以上の処理量であってもよく、 0.5 kg/h 以上の処理量であることが特に好ましい。磁選処理は、磁極部を有する電磁篩装置を用いて実施してもよい。

[0039] 吸引除去工程に供される六方晶窒化ホウ素粉末は、 $50\text{ }\mu\text{m}\sim 300\text{ }\mu\text{m}$ の任意の値の均一層の状態であってもよい。均一層の状態とする方法は特に限定されないが、例えば、ローラーにより六方晶窒化ホウ素粉末を均すことによって、均一層の状態としてもよい。均一層の状態の六方晶窒化ホウ素粉末を吸引除去工程に供することにより、高精度な吸引除去が可能となる。

[0040] 吸引除去工程を実現する構成は特に限定されない。例えば、吸引除去工程は、カメラ、画像データを処理する構成、ローラー、および吸引除去する構成の全てを備える装置によって実現されてもよい。

[0041] 吸引除去工程により磁選工程、酸化処理工程、酸洗浄工程、および焼成工程によって除去しきれなかった有色異物を除去することができる。このため、吸引除去工程を含む製造方法により、純度の高い六方晶窒化ホウ素粉末を製造することができる。

[0042] (その他の処理)

本実施形態に係る製造方法は、還元窒化工程によって粗六方晶窒化ホウ素粉末の調製を行ってもよい。還元窒化工程は、粗六方晶窒化ホウ素粉末の原

料を混合した原料混合物を窒素雰囲気下にて1600～1950℃の温度に加熱し、還元窒化反応を行う。還元窒化反応における反応系への窒素源の供給は、焼成工程と同様の方法としてよい。原料混合物は、含酸素ホウ素化合物、カーボン源、含酸素カルシウム化合物および含炭素ホウ素化合物を含むものであってもよい。

[0043] 含酸素ホウ素化合物としては、ホウ素と酸素原子とを含有する化合物が使用されてよい。含酸素ホウ素化合物としては、例えば、ホウ酸、無水ホウ酸、メタホウ酸、過ホウ酸、次ホウ酸、四ホウ酸ナトリウム、および過ホウ酸ナトリウムが挙げられる。これらのうち、入手が容易なホウ酸または酸化ホウ素が好適に用いられてよい。

[0044] カーボン源としては、例えば、カーボンブラック、活性炭、およびカーボンファイバー等の非晶質炭素の他、ダイヤモンド、グラファイト、およびナノカーボン等の結晶性炭素、ならびにモノマーまたはポリマーを熱分解して得られる熱分解炭素が挙げられる。そのうち、反応性の高い非晶質炭素が好ましく、更に、工業的に品質制御されている点で、カーボンブラックが特に好適に使用される。また、カーボンブラックとしては、例えばアセチレンブラック、ファーネスブラック、およびサーマルブラックを挙げることができる。

[0045] 含酸素カルシウム化合物としては、例えば、炭酸カルシウム、炭酸水素カルシウム、水酸化カルシウム、酸化カルシウム、硝酸カルシウム、硫酸カルシウム、リン酸カルシウム、およびシュウ酸カルシウムが挙げられる。これらは1種または2種類以上を混合して使用することも可能である。その中でも、酸化カルシウムまたは炭酸カルシウムを使用するのが好ましい。

[0046] 含炭素ホウ素化合物としては、炭素とホウ素とを含有する化合物（例えば、炭化ホウ素）が使用されてよい。含炭素ホウ素化合物の粒子径としては、1～500μmが好ましく、10～400μmが更に好ましく、20～300μmが更に好ましい。

[0047] 還元窒化反応後の六方晶窒化ホウ素粉末について、解砕を行うことで所定

の粒度分布に調整してもよい。解砕は、ジェットミル、ボールミル、ハンマーミル、および石臼式粉砕機等を用いて緩やかに行うことが好ましい。また、解砕後の粉末を、気流分級または篩処理による分級処理によって、適宜粒度を調整してもよい。

[0048] 調整される粒度の範囲については、磁選工程に用いられる電磁篩装置のスクリーンが有するメッシュの目より大きい粒子を除去するように設定することが好ましい。即ち、メッシュの目より大きい粉末が存在する場合、前記スクリーンの目を通過することができないことから、目詰まりが発生し、電磁篩装置の機能を発揮することができなくなり、最悪の場合、装置が故障する等の不具合が発生する原因となるためである。

[0049] [六方晶窒化ホウ素粉末]

本発明の他の実施形態に係る六方晶窒化ホウ素粉末について、以下に説明する。本実施形態の六方晶窒化ホウ素粉末は、六方晶窒化ホウ素粒子を含む。六方晶窒化ホウ素粉末中、輝度が110以下であり、粒径が50 μm 以上である有色異物の個数は、1kgあたり30個以下である。

[0050] 六方晶窒化ホウ素粉末中の有色異物の個数は、1kgあたり30個以下であればよく、25個以下であることが好ましく、20個以下であることがより好ましく、10個以下であることがさらに好ましい。有色異物は六方晶窒化ホウ素粉末の特性の妨げとなる場合があり、有色異物の個数は少なければ少ないほど好ましい、例えば有色異物が0個であってもよい。有色異物の個数の測定方法は、1kgの六方晶窒化ホウ素粉末を測定できる構成であれば、特に限定されない。例えば、カメラを備え付けられた任意の粉体異物検査除去機によって実現されてもよい。

[0051] 有色異物が当該範囲である六方晶窒化ホウ素粉末は、有色異物が極端に少ない六方晶窒化ホウ素粉末である。このため、シートに充填した際に高い耐電圧を安定して発揮することができる。また、その他の用途に用いる場合であっても、六方晶窒化ホウ素粉末の特性を高水準で安定して発揮させることができる。

- [0052] さらに、六方晶窒化ホウ素粉末は、下記式（１）により算出される白色度 W が 93 以上であることが好ましく、95 以上であることがより好ましい。このような六方晶窒化ホウ素粉末は、異物がより少ない六方晶窒化ホウ素粉である。このため、シートに充填した際に、より高い耐電圧を発揮できる。また、その他の用途に用いる場合であっても、六方晶窒化ホウ素粉末の特性を高水準で安定して発揮させることができる。
- [0053] 六方晶窒化ホウ素粉末に含まれる Fe 、 Ca 、 Al 、および Si 元素の総含有量は、3 ppm 以下であることが好ましく、2.5 ppm 以下であることがより好ましい。 Fe 、 Ca 、 Al 、および Si 元素の総含有量が上限値を上回らないことで、電気絶縁性に優れる六方晶窒化ホウ素粉末とすることができる。
- [0054] 六方晶窒化ホウ素粉末に含まれる Fe の存在量は 1 ppm 以下であることが好ましく、0.5 ppm 以下であることがより好ましい。六方晶窒化ホウ素粉末に含まれる Ca の存在量は 2.5 ppm 以下であることが好ましく、2 ppm 以下であることがより好ましい。六方晶窒化ホウ素粉末に含まれる Al の存在量は 0.8 ppm 以下であることが好ましく、0.5 ppm 以下であることがより好ましい。六方晶窒化ホウ素粉末に含まれる Si の存在量は 0.8 ppm 以下であることが好ましく、0.5 ppm 以下であることがより好ましい。
- [0055] 六方晶窒化ホウ素粉末に含まれる C の存在量は、0.05 % 以下であることが好ましく、0.035 % 以下であることがより好ましい。当該 C の存在量が上限値を上回らないことで、電気絶縁性に優れる六方晶窒化ホウ素粉末とすることができる。
- [0056] 六方晶窒化ホウ素粉末中の Fe 、 Ca 、 Al 、および Si 元素は従来公知の ICP 測定に基づいて定量することができる。また、六方晶窒化ホウ素粉末中の C の存在量は、六方晶窒化ホウ素粉末を酸素気流中で燃焼させ、発生した CO ガスおよび CO_2 ガス量から定量することができる。
- [0057] 六方晶窒化ホウ素粉末の平均粒子径は、2 ~ 90 μm であってもよく、特

に、 $5 \sim 70 \mu\text{m}$ であることが好ましい。ここで、平均粒子径が $2 \mu\text{m}$ 未満の場合、粒子径が小さすぎて取扱いが困難になる可能性があり、また $90 \mu\text{m}$ を超える場合、粒子径が大きすぎて取扱いが困難になる可能性がある。

[0058] また、六方晶窒化ホウ素粉末の結晶性を示す黒鉛化指数（G I 値；G r a p h i t e I n d e x s c o r e）は、 $1.0 \sim 2.5$ であることが好ましく、 $1.3 \sim 2.0$ であることがより好ましく、 $1.4 \sim 1.8$ であることがより好ましく、 $1.5 \sim 1.7$ であることがより好ましい。G I 値は、X線回折スペクトルの（100）面および（101）面に由来するピーク面積の総和を、（102）面に由来するピーク面積で除することにより求められる。

[0059] （用途）

上述の六方晶窒化ホウ素粉末は、フィラーとして樹脂に充填することができる。フィラーとして樹脂に充填した場合、得られる樹脂組成物に極めて高い絶縁性能を付与することを可能とする。例えば、上述の六方晶窒化ホウ素粉末を充填した樹脂から樹脂シートを作製した場合、当該樹脂シートに $100 \text{ kV} / \text{mm}$ 以上の絶縁性能を付与することができる。ここで、作製した樹脂シートのうち70%以上が $100 \text{ kV} / \text{mm}$ 以上であれば、絶縁性能が付与されたと判断してもよい。このような樹脂シートの用途は特に限定されないが、例えば回路基板用途および多層プリント配線板の絶縁層用途等に用いることができる。

[0060] 六方晶窒化ホウ素粉末は、その他にも、立方晶窒化ホウ素または窒化ホウ素成型品等の窒化ホウ素加工品製品の原料、エンジニアリングプラスチックの核剤、フェーズチェンジマテリアル、固体状または液体状のサーマルインターフェイスマテリアル、熔融金属または熔融ガラス成形型の離型剤、化粧品、および複合セラミックス原料等の用途にも使用することができる。

[0061] 本発明の一態様に係る六方晶窒化ホウ素粉末は、例えば、上述の製造方法を用いることにより得られるものである。上述のような製造方法で得られた六方晶窒化ホウ素粉末は、輝度が110以下であり、粒径が $50 \mu\text{m}$ 以上で

ある有色異物の個数は、1 kgあたり30個以下であるという特徴がある。
また、上述の六方晶窒化ホウ素粉末を用いて作製した樹脂シートは高い絶縁耐力を有する。

[0062] 一方で、その他の構造または特性によって、本発明の一態様に係る六方晶窒化ホウ素粉末を直接特定することが不可能、またはおよそ実質的でないという事情が存在する。例えば、上述の六方晶窒化ホウ素粉末の製造方法は、有色異物を除去するための工程を含むことを特徴としているが、最終産物である六方晶窒化ホウ素粉末には、除去された有色異物は含まれていないため、除去された有色異物を六方晶窒化ホウ素粉末の特定事項とすることはできない。このため、上述した特徴以外に基づいて、本発明の一態様に係る六方晶窒化ホウ素粉末を一概に文言にて特定することは不可能である

本発明は上述した各実施形態に限定されるものではなく、請求項に示した範囲で種々の変更が可能であり、異なる実施形態にそれぞれ開示された技術的手段を適宜組み合わせて得られる実施形態についても本発明の技術的範囲に含まれる。

[0063] <まとめ>

上述の通り、本発明の態様1に係る六方晶窒化ホウ素粉末の製造方法は、粗六方晶窒化ホウ素粉末に対して、

- (1) 磁選処理により着磁性異物を除去する、磁選工程、
- (2) 300℃以上、700℃以下の条件での酸化処理により有機成分の含有量を低減する、酸化処理工程、
- (3) 酸洗浄により酸可溶不純物を除去する、酸洗浄工程、および
- (4) 1800℃以上2050℃以下の条件で焼成する、焼成工程、を含む処理を行い、

前記(2)の前記酸化処理工程および前記(3)の前記酸洗浄工程による処理は、前記(4)の前記焼成工程による処理より前に行う方法である。

[0064] 本発明の態様2に係る六方晶窒化ホウ素粉末の製造方法は、前記態様1において、前記六方晶窒化ホウ素粉末に含まれる、輝度が110以下であり、

粒径が $50\mu\text{m}$ 以上の有色異物をカメラにより取得された画像データに基づいて判定し、判定された前記有色異物を吸引によって除去する、吸引除去工程をさらに含んでもよい。

[0065] 本発明の態様3に係る六方晶窒化ホウ素粉末は、六方晶窒化ホウ素粒子を含み、輝度が110以下であり、粒径が $50\mu\text{m}$ 以上である有色異物の個数が1kgあたり30個以下である。

[0066] 本発明の態様4に係る六方晶窒化ホウ素粉末は、前記態様3において、下記式(1)により算出される白色度Wが93以上である。

[0067]
$$W = 100 - [(100 - L)^2 + a^2 + b^2]^{1/2} \dots (1)$$

実施例

[0068] 本発明の一実施例について以下に説明するが、本発明は以下に示す各実施例に限定されるものではない。

[0069] <六方晶窒化ホウ素粉末の製造>

実施例および比較例に係る六方晶窒化ホウ素粉末について、以下に示す方法によりそれぞれ製造した。

[0070] (実施例1)

実施例1に係る粗六方晶窒化ホウ素粉末を調製した。酸化ホウ素141g、カーボンブラック56g、酸化カルシウム32gおよび炭化ホウ素30gを含む混合物259gを、ボールミルを使用して混合した。混合物を、黒鉛製タンマン炉を用い、窒素ガス雰囲気下、最高温度 1750°C で2時間保持することで還元窒化処理を行った。

[0071] 得られた粗六方晶窒化ホウ素について解砕を行い、粒度分布で $10\mu\text{m}$ 以下の凝集粒子の体積基準割合を4%、 $10\mu\text{m}$ 超 $50\mu\text{m}$ 以下の凝集粒子の体積基準割合を48%に調整した。粒度分布調整後の粗六方晶窒化ホウ素粉末を容器に投入し、5倍量の塩酸(7質量% HCl)を加え、回転数700rpmで24時間攪拌して酸洗処理を行った。当該酸洗処理の後、酸をろ過し、使用した酸と同量の純粋に、ろ過して得られた粗六方晶窒化ホウ素粉末を分散させ、再度ろ過した。この操作を5回繰り返した後、 200°C で6時

間真空乾燥させた。

[0072] 粗六方晶窒化ホウ素粉末を、 $\phi 145\text{ mm}$ 、厚み 10 mm 、目開き $5\text{ mm} \times 8\text{ mm}$ 、 54 cm^2 の磁極部面積を有し且つ 1.6 T に磁化されたスクリーンが40枚重ねられている電磁篩装置を用いて、磁選を行った。磁選は、 15 kg/h の処理量で行った（磁選工程）。

[0073] 磁選後の粗立方晶窒化ホウ素粉末を、大気雰囲気下、 600°C の酸化温度で、5時間加熱して、有機成分を酸化した（酸化処理工程）。

[0074] 還元窒化処理後の六方晶窒化ホウ素粉末を容器に投入し、5倍量の塩酸（7質量% HCl ）を加え、回転数 700 rpm で5時間攪拌して酸洗処理を行った（酸洗浄工程）。当該酸洗処理の後、酸をろ過し、使用した酸と同量の純粋に、ろ過して得られた六方晶窒化ホウ素粉末を分散させ、再度ろ過した。この操作を5回繰り返した後、 200°C で6時間真空乾燥させた。

[0075] 乾燥後に得られた粗六方晶窒化ホウ素粉末を、黒鉛製タンマン炉を用い、窒素ガス雰囲気下、 1900°C で6時間保持することで焼成処理を行った（焼成工程）。炉内を冷却した後に、実施例1に係る六方晶窒化ホウ素粉末を炉内から回収した。

[0076] 各実施例および比較例に係る六方晶窒化ホウ素粉末の製造条件について、実施例1の条件と異なる点を以下に示す。また、実施例1～6、比較例1～4において各工程が実施された条件の一覧を表1に示す。

[0077] （実施例2）

磁選処理量： 25 kg/h 、酸化温度： 500°C 、焼成温度： 1850°C

（実施例3）

磁選処理量： 10 kg/h 、酸化温度： 650°C 、焼成温度： 1950°C

（実施例4）

磁選処理量： 15 kg/h 、酸化温度： 550°C

（実施例5）

磁選処理量： 45 kg/h 、酸化温度： 450°C 、焼成温度： 1850°C

（実施例6）

磁選処理量：15kg/h、酸化温度：600℃

さらに、粉体異物検査除去機（日新化成株式会社製、PGS-R2）を用いて、得られた六方晶窒化ホウ素粉末から、輝度が110以下であり、粒径が50μm以上の粒子である有色異物を吸引により除去した（吸引除去工程）。

[0078] （比較例1）

磁選：実施なし、酸化温度：500℃

（比較例2）

酸化処理：実施なし

（比較例3）

酸化温度：500℃、酸洗浄：実施なし

（比較例4）

酸化温度：500℃、酸洗浄後の焼成：実施なし

[0079] [表1]

（表1）

	製法				
	磁選 (処理量)	酸化処理 (温度)	酸洗浄	酸洗浄後の 焼成(温度)	吸引除去
実施例1	15kg/h	600℃	実施	1900℃	実施なし
実施例2	25kg/h	500℃	実施	1850℃	実施なし
実施例3	10kg/h	650℃	実施	1950℃	実施なし
実施例4	15kg/h	550℃	実施	1900℃	実施なし
実施例5	45kg/h	450℃	実施	1850℃	実施なし
実施例6	15kg/h	600℃	実施	1900℃	実施
比較例1	実施なし	500℃	実施	1900℃	実施なし
比較例2	15kg/h	実施なし	実施	1900℃	実施なし
比較例3	15kg/h	500℃	実施なし	1900℃	実施なし
比較例4	15kg/h	500℃	実施	実施なし	実施なし

[0080] ＜六方晶窒化ホウ素粉末の評価＞

（有色異物の含有量）

実施例 1 ～ 6 および比較例 1 ～ 4 のそれぞれで調製した六方晶窒化ホウ素粉末 1 k g に含まれる 5 0 μ m 以上の有色異物の個数を測定した。有色異物の個数は、異物検査機（日新化成株式会社製、P G S - R 2）を用いて測定した。異物検査機の検査部には、F A 用画像処理装置（P a n a s o n i c 社製、I M A G E C H E C K A R P V 2 0 0）が搭載されていた。

[0081] （S E M - E D S 検査）

検出された有色異物うち、5 個を抜き取り S E M - E D S 検査により、各有色異物の元素分析を行った。S E M - E D S 検査に用いた装置および S E M - E D S 検査の条件を下記に示す。

[0082] （装置）

走査型電子顕微鏡（S E M）：日本電子社 J S M - 7 0 0 0 F

エネルギー分散型 X 線分析装置（E D S）：E D X A 社 G E N E S I S

（条件）下記条件で定性分析を行い、元素のピークを確認

加速電圧 1 0 k V、分析対象元素 5 B - 9 2 U

S E M - E D S 元素分析の結果、抜き取られた有色異物の主成分は、F e、C a、A l・S i、C のいずれかであった。実施例 1 ～ 6 および比較例 1 ～ 4 に係る六方晶窒化ホウ素粉末についての S E M - E D S 元素分析の結果を表 2 に示した。

[0083] （不純物分析）

実施例 1 ～ 6 および比較例 1 ～ 4 に係る六方晶窒化ホウ素粉末の任意の箇所より 0. 5 g ずつ 1 0 サンプルを採取し、各サンプルをフッ酸 1 0 m l、硫酸 1. 2 5 m l、および硝酸 0. 2 5 m l と共に加圧分解容器に投入し、乾燥機で 1 6 0 $^{\circ}$ C 2 0 時間放置させた後、溶液を白金皿に移し、1 時間かけて 2 2 0 $^{\circ}$ C まで昇温し、白煙が出なくなるまで 2 2 0 $^{\circ}$ C で 5 時間加熱した後、塩酸 1. 2 5 m l、および超純水 1. 2 5 m l を加えて回収し、ポリプロピレン製メスフラスコ 2 5 m l で超純水を加えて定容し、溶液を I C P 発光装置（サーモフィッシャーサイエンティフィック株式会社製：I C A P 6 5 0 0）により、F e、C a、A l、S i の存在量を求め、各サンプルの含有

量を算出し、10サンプルの平均値を表2に示した。

[0084] (全炭素含有量の測定)

六方晶窒化ホウ素粉末中の全炭素含有量は、株式会社堀場製作所製セラミックス中炭素分析装置E M I A - 1 1 0を使用した。粉末を酸素気流中で燃焼させ、発生したCOガスおよびCO₂ガス量から全炭素含有量を定量した。実施例1～6および比較例1～4に係る六方晶窒化ホウ素粉末についての全炭素含有量の測定結果を表2に示した。

[0085] (白色度)

六方晶窒化ホウ素粉末のL*値、a*値、b*値を色差計Z E 7 7 0 0 (日本電色工業株式会社製)により測定した。六方晶窒化ホウ素粉末の白色度Wを、下記式(1)により、算出した。

[0086]
$$W = 100 - [(100 - L)^2 + a^2 + b^2]^{1/2} \dots (1)$$

実施例1～6および比較例1～4に係る六方晶窒化ホウ素粉末の白色度Wの算出結果を表2に示した。

[0087] (平均粒子径)

六方晶窒化ホウ素粉末の平均粒子径は、日機装株式会社製：粒子径分布測定装置M T 3 0 0 0を使用して測定した。なお、測定サンプルは、以下に示す方法により調製した。まず、50mLスクリー管瓶にエタノール20gを分散媒として加え、エタノール中に六方晶窒化ホウ素粉末1gを分散させた。そして、超音波処理を行わず、測定サンプルの粒度分布測定を行った。実施例1～6、比較例1～4に係る六方晶窒化ホウ素粉末の平均粒径を表2に示した。

[0088] (黒鉛化指数：GI値)

X線回折測定は、R i g a k u社製全自動水平型多目的X線回折装置 S m a r t L a bを用いて測定した。測定条件はスキンスピード20度/分、ステップ幅0.02度、スキャン範囲10～90度とした。GI値は、六方晶窒化ホウ素粉末のX線回折スペクトルの(100)、(101)、および(102)回折線の積分強度比(面積比)から、式、 $GI = [\{(100$

)+ (101)} / [(102)] によって算出した。

[0089] [表2]

(表 2)

	焼成後 BN粉末	有色異物内訳 (5個抜き取り SEM-EDS検査)				不純物分析(ICP)				炭素 含有量 %	白色度 W	平均 粒子径 μm	黒鉛化 指数 (GI値)
	1kgあたり 50 μm以上の 有色異物	Fe	Ca	Al ・ Si	C	Fe	Ca	Al	Si				
	個	個	個	個	個	ppm	ppm	ppm	ppm				
実施例1	10	1	2	1	1	0.1	1	0.2	0.1	0.026	94	30	1.9
実施例2	20	1	1	1	2	0.2	2	0.1	0.2	0.019	95	35	1.8
実施例3	5	1	2	1	1	0	0.5	0	0.2	0.011	93	20	2.0
実施例4	15	0	1	2	2	0	0.2	0.3	0.3	0.018	96	30	1.6
実施例5	25	1	1	1	2	0.3	1.2	0.3	0.2	0.029	96	45	1.6
実施例6	0	-	-	-	-	0	0.5	0.2	0.1	0.009	96	35	1.6
比較例1	50	3	1	1	0	3	0.2	1	0.4	0.07	93	35	2.1
比較例2	60	1	1	0	3	0.1	0.2	0.2	0.1	0.056	95	20	1.8
比較例3	70	1	1	2	1	1.2	1	2	1	0.065	92	30	1.7
比較例4	80	1	2	1	1	1.3	0.2	0.4	1	0.076	90	45	2.7

[0090] (絶縁性能)

実施例 1 ～ 6 および比較例 1 ～ 4 に係る六方晶窒化ホウ素粉末をエポキシ樹脂に混合し樹脂組成物を作製し、熱伝導率の評価を行った。エポキシ樹脂（三菱化学株式会社製 J E R 8 2 8 ） 1 0 0 質量部および硬化剤（イミダゾール系硬化剤、四国化成株式会社製キュアゾール 2 E 4 M Z ） 5 質量部を用い、溶媒としてメチルエチルケトン 2 1 0 質量部を加え、ワニス状混合物を調製した。次に、エポキシ樹脂 6 5 体積%、六方晶窒化ホウ素粉末 3 5 体積%となるように前記ワニス状混合物と六方晶窒化ホウ素粉末を自転・公転ミキサー（倉敷紡績株式会社製 M A Z E R U S T A R ）にて混合して樹脂組成物を得た。

[0091] 前記樹脂組成物を、テスター産業社製自動塗工機 P I - 1 2 1 0 を用いて、P E T フィルム上に厚み 2 5 0 ～ 3 0 0 μ m 程度に塗工および乾燥し、減圧下、温度：2 0 0 ℃、圧力：5 M P a、保持時間：3 0 分の条件で硬化させ、厚さ 2 0 0 μ m のシートを実施例または比較例ごとにシート 1 0 枚を作製した。各シートの耐電圧試験機（多摩電測株式会社製）にて絶縁性能を測

定した。

[0092] 測定の結果を表3に示す。表3中、絶縁耐力が100kV/mm以上であるシートが10枚であったときを「非常に良い」と示し、7枚以上であったときを「良い」と示し、3枚以下であったときを「悪い」と示した。

[0093] [表3]

(表3)

	樹脂シート物性 65vol%エポキシ樹脂 絶縁性能
実施例1	良い
実施例2	良い
実施例3	良い
実施例4	良い
実施例5	良い
実施例6	非常に良い
比較例1	悪い
比較例2	悪い
比較例3	悪い
比較例4	悪い

産業上の利用可能性

[0094] 本発明に関わる六方晶窒化ホウ素粉末は、有色異物の個数が極めて少ないため、多くの用途において素材の原料として使用することができる。

請求の範囲

- [請求項1] 粗六方晶窒化ホウ素粉末に対して、
- (1) 磁選処理により着磁性異物を除去する、磁選工程、
 - (2) 300℃以上、700℃以下の条件での酸化処理により有機成分の含有量を低減する、酸化処理工程、
 - (3) 酸洗浄により酸可溶不純物を除去する、酸洗浄工程、および
 - (4) 1800℃以上2050℃以下の条件で焼成する、焼成工程、を含む処理を行い、
- 前記(2)の前記酸化処理工程および前記(3)の前記酸洗浄工程による処理は、前記(4)の前記焼成工程による処理より前に行うことを特徴とする六方晶窒化ホウ素粉末の製造方法。
- [請求項2] 前記六方晶窒化ホウ素粉末に含まれる、輝度が110以下であり、粒径が50μm以上の有色異物を、カメラにより取得された画像データに基づいて判定し、判定された前記有色異物を吸引によって除去する、吸引除去工程をさらに含む、請求項1に記載の製造方法。
- [請求項3] 六方晶窒化ホウ素粒子を含み、
- 輝度が110以下であり、粒径が50μm以上である有色異物の個数が1kgあたり30個以下である、六方晶窒化ホウ素粉末。
- [請求項4] 下記式(1)により算出される白色度Wが93以上である、請求項3に記載の六方晶窒化ホウ素粉末。
- $$W = 100 - [(100 - L)^2 + a^2 + b^2]^{1/2} \cdots (1)$$

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2024/015665

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER C01B 21/064 (2006.01)i FI: C01B21/064 M; C01B21/064 G According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C01B21/064 Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Published examined utility model applications of Japan 1922-1996 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2024 Registered utility model specifications of Japan 1996-2024 Published registered utility model applications of Japan 1994-2024 Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) JSTPlus/JSTChina/JST7580 (JDreamIII)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2022/071246 A1 (DENKA CO., LTD.) 07 April 2022 (2022-04-07) paragraphs [0036]-[0038], [0069]-[0080], table 1	3, 4
A		1, 2
A	JP 6955127 B1 (TOKUYAMA CORPORATION) 27 October 2021 (2021-10-27) entire text	1-4
A	WO 2022/071227 A1 (DENKA CO., LTD.) 07 April 2022 (2022-04-07) entire text	1-4
☐ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☒ See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: “A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance “D” document cited by the applicant in the international application “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 08 July 2024		Date of mailing of the international search report 16 July 2024
Name and mailing address of the ISA/JP Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan		Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2024/015665

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)		Publication date (day/month/year)
WO	2022/071246	A1	07 April 2022	US	2023/0357008	A1
				paragraphs [0037]-[0039], [0071]-[0082], table 1		
				KR	10-2023-0074496	A
				TW	202222678	A

JP	6955127	B1	27 October 2021	US	2023/0014886	A1
				entire text		
				WO	2021/124961	A1
				EP	4079684	A1
				TW	202132212	A
				CN	114728790	A
				KR	10-2022-0117201	A

WO	2022/071227	A1	07 April 2022	US	2023/0357007	A1
				entire text		
				KR	10-2023-0074740	A
				TW	202216585	A

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

C01B 21/064(2006.01)i
FI: C01B21/064 M; C01B21/064 G

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

C01B21/064

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922 - 1996年
日本国公開実用新案公報 1971 - 2024年
日本国実用新案登録公報 1996 - 2024年
日本国登録実用新案公報 1994 - 2024年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

JSTPlus/JSTChina/JST7580 (JDreamIII)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	WO 2022/071246 A1（デンカ株式会社）07.04.2022（2022 - 04 - 07） [0036]-[0038][0069]-[0080][表1]	3, 4
A		1, 2
A	JP 6955127 B1（株式会社トクヤマ）27.10.2021（2021 - 10 - 27） 全文	1-4
A	WO 2022/071227 A1（デンカ株式会社）07.04.2022（2022 - 04 - 07） 全文	1-4

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☒ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー
“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技术水準を示すもの
“D” 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献
“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
08.07.2024

国際調査報告の発送日
16.07.2024

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）

青木 千歌子 4G 9351

電話番号 03-3581-1101 内線 3416

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/JP2024/015665

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
WO	2022/071246	A1	07.04.2022	US	2023/0357008	A1	
				[0037]-[0039][0071]-[0082], 表 1			
				KR	10-2023-0074496	A	
				TW	202222678	A	

JP	6955127	B1	27.10.2021	US	2023/0014886	A1	
				全文			
				WO	2021/124961	A1	
				EP	4079684	A1	
				TW	202132212	A	
				CN	114728790	A	
				KR	10-2022-0117201	A	

WO	2022/071227	A1	07.04.2022	US	2023/0357007	A1	
				全文			
				KR	10-2023-0074740	A	
				TW	202216585	A	
