(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
2020年10月8日(08.10.2020)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2020/203695 A1

(51) 国際特許分類:
C01B 21/068 (2006.01) *C04B 35/593* (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2020/013830

(22) 国際出願日： 2020年3月26日(26.03.2020)

(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 2019-066158 2019年3月29日(29.03.2019) 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: 中村 祐三 (**NAKAMURA Yuzo**); 〒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). 宮下 敏行(**MIYASHITA Toshiyuki**); 〒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).

(74) 代理人: 長谷川 芳樹，外(**HASEGAWA Yoshiki** et al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内二丁目１番１号丸の内 ＭＹ ＰＬＡＺＡ（明治安田生命ビル） ９階 創英国際特許法律事務所 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, 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, 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)）

WO 2020/203695 A1

(54) **Title:** SILICON NITRIDE POWDER AND PRODUCTION METHOD THEREFOR, AND PRODUCTION METHOD FOR SILICON NITRIDE SINTERED BODY

(54) 発明の名称： 窒化ケイ素粉末及びその製造方法、並びに窒化ケイ素焼結体の製造方法

(57) **Abstract:** Provided is a silicon nitride powder having an internal oxygen content of 0.6 mass% or less. Also provided is a production method that is for a silicon nitride powder and that has a step for firing a silicon powder having an oxygen concentration of 0.4 mass% or less in a mixed atmosphere of nitrogen and hydrogen to obtain a fired product, and a step for processing the fired product using hydrofluoric acid having a hydrogen fluoride concentration of 10-40 mass%.

(57) 要約：内部酸素量が０．６質量％以下である窒化ケイ素粉末を提供する。酸素濃度が０．４質量％以下であるケイ素粉末を窒素と水素を含む混合雰囲気下で焼成して焼成物を得る工程と、焼成物を弗化水素濃度が１０～４０質量％である弗酸で処理する工程と、を有する、窒化ケイ素粉末の製造方法を提供する。

明　細　書

発明の名称 ：

窒化ケイ素粉末及びその製造方法、並びに窒化ケイ素焼結体の製造方法

技術分野

[0001] 本開示は、窒化ケイ素粉末及びその製造方法、並びに窒化ケイ素焼結体の製造方法に関する。

背景技術

[0002] 窒化ケイ素は、強度、硬度、靭性、耐熱性、耐食性、耐熱衝撃性等に優れた材料であることから、ダイカストマシン及び溶解炉等の各種産業用の部品、及び自動車部品等に利用されている。また、窒化ケイ素は、高温における機械的特性にも優れることから、高温強度、高温クリープ特性が求められるガスタービン部品に適用することが検討されている。例えば、特許文献１では、窒化ケイ素焼結体の高温特性を向上させる方法として、窒化ケイ素粉末の全酸素量を１．５質量％以下にして、焼結時に精製する粒界相を低減し、融点を高く維持して高温特性を向上することが検討されている。

[0003] 窒化ケイ素基板は、自動車及び工作機械等のパワーモジュール等の絶縁基板としての利用も検討されている。例えば、特許文献２では、アルミニウム－セラミックス接合基板に窒化ケイ素基板を用いることが提案されている。このような用途では、高い絶縁性及び放熱性を有することが求められる。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開平７－２０６４０９号公報

特許文献2：特開２０１１－０７７５４６号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 窒化ケイ素基板としては、優れた放熱性を実現するために、高い熱伝導率を有することが求められる。基板に用いられる窒化ケイ素焼結体において、

熱伝導率に影響を与える因子としては窒化ケイ素焼結体に存在する欠陥の量が挙げられる。窒化ケイ素焼結体における欠陥の量は、焼結条件のみならず、窒化ケイ素焼結体に用いられる窒化ケイ素粉末の物性も影響すると考えられる。そこで、本開示では、高い熱伝導率を有する窒化ケイ素焼結体を得ることが可能な窒化ケイ素粉末及びその製造方法を提供する。また、本開示では、高い熱伝導率を有する窒化ケイ素焼結体の製造方法を提供する。

課題を解決するための手段

[0006] 本開示の一側面に係る窒化ケイ素粉末は、内部酸素量が０．６質量％以下である。このような窒化ケイ素粉末は内部酸素量が十分に低いことから、焼結原料として用いると、高い熱伝導率を有する窒化ケイ素焼結体を得ることができる。その理由としては、内部酸素量が少ない窒化ケイ素粉末を用いることによって窒化ケイ素焼結体の内部の欠陥を低減できるためと考えられる。

[0007] 上記窒化ケイ素粉末の表面酸素量は内部酸素量以下であってもよい。これによって、一層高い熱伝導率を有する窒化ケイ素焼結体を得ることができる。

[0008] 上記窒化ケイ素粉末の表面酸素量は内部酸素量よりも大きくてもよい。表面酸素量が大きくなると、焼結の際に液相が形成されやすくなり、窒化ケイ素焼結体の強度を向上することができる。

[0009] 本開示の一側面に係る窒化ケイ素粉末の製造方法は、酸素濃度が０．４質量％以下であるケイ素粉末を、窒素と水素及びアンモニアからなる群より選ばれる少なくとも一つとを含む混合雰囲気下で焼成して焼成物を得る工程と、焼成物を弗化水素濃度が１０～４０質量％である弗酸で処理する工程と、を有する。この製造方法によれば、酸素濃度が十分に低いケイ素粉末を用いていることから、内部酸素量が十分に低い窒化ケイ素粉末を得ることができる。また、焼成物を弗化水素濃度が１０～４０質量％である弗酸で処理していることから、表面酸素量も内部酸素と大きく変わらない範囲に調整することができる。したがって、十分な強度を有しつつ高い熱伝導率を有する窒化

ケイ素焼結体を製造するための窒化ケイ素粉末として好適に用いることができる。

[0010] 本開示の一側面に係る窒化ケイ素焼結体の製造方法は、上述の窒化ケイ素粉末の製造方法で製造される窒化ケイ素粉末を含む焼結原料を成形して焼成する工程を有する。この製造方法によれば、高い熱伝導率を有する窒化ケイ素焼結体を製造することができる。

発明の効果

[0011] 本開示によれば、高い熱伝導率を有する窒化ケイ素焼結体を得ることが可能な窒化ケイ素粉末及びその製造方法を提供することができる。また、高い熱伝導率を有する窒化ケイ素焼結体の製造方法を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]酸素・窒素分析チャートの一例を示す図である。

[図2]実施例１の酸素・窒素分析チャートを示す図である。

発明を実施するための形態

[0013] 以下、場合により図面を参照して、本開示の一実施形態について説明する。ただし、以下の実施形態は、本開示を説明するための例示であり、本開示を以下の内容に限定する趣旨ではない。

[0014] 一実施形態に係る窒化ケイ素粉末（Si_3N_4粉末）の内部酸素量は０．６質量％以下である。内部酸素は、窒化ケイ素粉末の表面に露出せずに、粉末の内部に存在する酸素である。内部酸素量は、窒化ケイ素焼結体の原料として用いたときに、窒化ケイ素焼結体の熱伝導率を一層高くする観点から、０．５質量％以下であってよく、０．４質量％以下であってもよい。この内部酸素量の下限は特に限定されないが、製造の容易性の観点から、０．１質量％以上であってよく、０．２質量％以上であってもよい。内部酸素量は、窒化ケイ素粉末の原料における酸素濃度を変えることで調節することができる。

[0015] 窒化ケイ素粉末の表面酸素量は、窒化ケイ素焼結体の熱伝導率を十分に低くする観点から、内部酸素量以下であってよい。表面酸素は、窒化ケイ素粉

末の表面に結合ないし付着する酸素である。表面酸素量は、例えば０．６質量％以下であってよいし、０．５質量％以下であってよく、０．４質量％以下であってもよい。この表面酸素量の下限は特に限定されないが、製造の容易性の観点から、０．０５質量％以上であってよく、０．１質量％以上、０．２質量％以上であってもよい。表面酸素量は、窒化ケイ素粉末の表面処理を行うことによって調節することができる。

[0016] 別の実施形態では、窒化ケイ素粉末の表面酸素量は、窒化ケイ素焼結体の原料として用いたときに、窒化ケイ素焼結体の強度を高くする観点から、内部酸素量よりも大きくてよく、０．７質量％以上であってよく、０．８質量％以上であってもよい。この表面酸素量の上限は特に限定されないが、製造の容易性の観点から、１．５質量％以下であってよく、１．０質量％以下であってもよい。

[0017] 窒化ケイ素粉末の全酸素量は、０．５質量％以上であってよく、０．７質量％以上であってよく、１．０質量％以上であってもよい。窒化ケイ素粉末の全酸素量は、２．０質量％以下であってよく、１．５質量％以下であってもよい。一例として、０．５～２．０質量％であってよく、０．７～１．５質量％であってよい。本開示において全酸素量とは、窒化ケイ素粉末の全体質量に対する酸素の質量の比率である。一方、内部酸素量とは、窒化ケイ素粉末の全体質量に対する内部の酸素の質量の比率である。また、表面酸素量とは、窒化ケイ素粉末の全体質量に対する表面の酸素の質量の比率である。したがって、以下の式が成立する。

全酸素量（質量％）＝内部酸素量（質量％）＋表面酸素量（質量％）

[0018] 本開示における内部酸素量、表面酸素量及び全酸素量は以下の手順で求められる。窒化ケイ素粉末の酸素量及び窒素量を、酸素・窒素分析装置を用いて分析する。測定用の試料を、ヘリウムガスの雰囲気中、８℃／秒の昇温速度で２０℃から２０００℃まで昇温する。昇温に伴って、脱離する酸素を検知する。昇温当初は、窒化ケイ素粉末の表面に結合している酸素が脱離する。脱離する酸素量を定量することで表面酸素量が求められる。

[0019] その後、温度が１４００℃近傍に到達すると、窒化ケイ素が分解し始める。窒化ケイ素の分解開始は、窒素の検出開始によって把握することができる。窒化ケイ素が分解し始めると、窒化ケイ素粉末の内部にある酸素が脱離する。この段階で脱離する酸素を定量することで内部酸素量が求められる。

[0020] 図１は、窒化ケイ素の酸素・窒素分析によって得られるチャートの一例である。ピーク１が表面酸素のピークであり、ピーク２が内部酸素のピークである。ピーク３は窒素のピークである。直線４は昇温直線を示している。ピーク１とピーク２は、窒素が発生し始める温度T_1で区画される。温度T_1は、ピーク３の検知が開始される温度であり、通常は１３５０～１５００℃の間にある。ピーク１の検知が開始される温度（ピーク１の左端の温度）は、例えば７５０～１２００℃である。ピーク２の検知が終了する温度（ピーク２の右端の温度）は、例えば１６００～１８００℃である。ピーク１，２の積算値（面積）から、検量線に基づいて内部酸素量と表面酸素量が求められる。また、内部酸素量と表面酸素量の合計が全酸素量となる。

[0021] 図１では、ピーク３の左端（温度T_1）と、ピーク１，２の谷の最深部とが一致しているが、これらは完全に一致していなくてもよい。ただし、通常であれば、ピーク１とピーク２のそれぞれの頂部が検知される温度の間に、温度T_1（ピーク３の左端）が位置することとなる。

[0022] 図１のような窒化ケイ素粉末は内部酸素量が十分に低いことから、焼結原料として用いると、熱伝導率に優れる窒化ケイ素焼結体を得ることができる。その理由としては、内部酸素量が少ない窒化ケイ素粉末を用いることによって窒化ケイ素焼結体の内部の欠陥を低減できるためと考えられる。図１のように、窒化ケイ素粉末の表面酸素量は内部酸素量以下であってよい。これによって、一層高い熱伝導率を有する窒化ケイ素焼結体を得ることができる。

[0023] 図１では、ピーク１の積算値よりもピーク２の積算値の方が大きくなっているが、この大小関係に限定されない。例えば、ピーク１の積算値の方がピーク２の積算値よりも大きくてもよい。この場合、表面酸素量の方が内部酸

素量よりも大きくなり、強度に優れる窒化ケイ素焼結体を製造することができる。ピーク２の積算値に対するピーク１の積算値の比、すなわち、内部酸素量に対する表面酸素量の比は、窒化ケイ素焼結体の熱伝導率を十分に高くする観点から、１以上であってよく、１．２以上であってよく、１．３以上であってもよい。

[0024] 内部酸素量に対する表面酸素量の比は、０．８以上であってよく、１．０以上であってよく、１．５以上であってもよい。特に、全酸素量を１．０質量％以下にするとともに、内部酸素量に対する表面酸素量の比を１．５以上にすることで、熱伝導率をより改善することができる。当該比は、好ましくは１．８以上、より好ましくは２．０以上である。内部酸素量に対する表面酸素量の比の上限は、５．０であってよく、４．０であってもよい。

[0025] 一実施形態に係る窒化ケイ素粉末の製造方法は、弗酸を含む前処理液を用いてケイ素粉末を前処理して酸素濃度が０．４質量％以下であるケイ素粉末を得る前処理工程と、当該ケイ素粉末を、窒素と水素を含む混合雰囲気下で焼成して焼成物を得る焼成工程と、焼成物を粉砕する粉砕工程と、粉砕した焼成物を弗化水素濃度が１０～４０質量％である弗酸で処理する後処理工程と、を有する。

[0026] 前処理工程では、弗酸を含む前処理液を用いて、ケイ素粉末に結合する酸素を低減する。前処理液は、弗酸と塩酸の混合物である混酸であってもよいし、弗酸のみを用いてもよい。前処理工程における前処理液の温度は、例えば４０～８０℃である。また、前処理液に浸漬する時間は、例えば１～１０時間である。

[0027] 前処理工程で得られるケイ素粉末の酸素濃度は０．４質量％以下であり、好ましくは０．３質量％以下であり、より好ましくは０．２質量％以下である。当該酸素濃度の下限に特に制限はなく、製造容易性の観点から０．１質量％以上であってよい。

[0028] 焼成工程では、ケイ素粉末を、窒素と水素及びアンモニアからなる群より選ばれる少なくも一つとを含む混合雰囲気下で焼成して窒化物を得る。混合

雰囲気における水素及びアンモニアの含有割合の合計は、１０～４０体積％であってよい。焼成温度は、例えば１１００～１４５０℃であってよく、１２００～１４００℃であってもよい。焼成時間は、例えば３０～１００時間であってよい。

[0029] 焼成工程で得られる窒化ケイ素がインゴット状になっている場合、焼成物を粉砕する粉砕工程を行う。粉砕は、粗粉砕と微粉砕の複数段階に分けて行ってもよい。粉砕は、例えばボールミルを用いて湿式で行ってもよい。窒化ケイ素は、比表面積が８．０～１５．０m^2／ｇになるまで粉砕してもよい。

[0030] 後処理工程では、粉砕した焼成物と弗化水素濃度が１０～４０質量％である弗酸とを配合して処理する。例えば、弗酸中に焼成物を分散させて処理してもよい。弗酸における弗化水素濃度は１２～３０質量％であってよい。後処理工程における弗酸の温度は、例えば４０～８０℃である。また、窒化ケイ素粉末を弗酸に浸漬する時間は、例えば１～１０時間である。

[0031] このような製造方法によって、窒化ケイ素粉末の全酸素量、内部酸素量及び表面酸素量を、上述の範囲に調整することができる。このようにして得られる窒化ケイ素粉末を用いて形成される窒化ケイ素焼結体は、高い熱伝導率を有する。

[0032] 一実施形態に係る窒化ケイ素焼結体の製造方法は、上述の窒化ケイ素粉末を主成分として含む焼結原料を成形して焼成する工程を有する。焼結原料は、窒化ケイ素粉末の他に、酸化物系焼結助剤を含んでいてもよい。酸化物系焼結助剤としてはY_2O_3、ＭｇＯ及びAl_2O_3等が挙げられる。焼結原料における酸化物系焼結助剤の含有量は、例えば３～１０質量％であってよい。

[0033] 上記工程では、上述の焼結原料を例えば３．０～３０ＭＰａの成形圧力で加圧して成形体を得る。成形体は一軸加圧して作製してもよいし、ＣＩＰによって作製してもよい。また、ホットプレスによって成形しながら焼成してもよい。成形体の焼成は、窒素ガス又はアルゴンガス等の不活性ガス雰囲気中で行ってよい。焼成時の圧力は、０．７～１ＭＰａであってよい。焼成温度は１８６０～２１００℃であってよく、１８８０～２０００℃であっても

よい。当該焼成温度における焼成時間は６～２０時間であってよく、８～１６時間であってよい。焼成温度までの昇温速度は、例えば１．０～１０．０℃／時間であってよい。

[0034] このようにして製造される窒化ケイ素焼結体は、高い熱伝導率を有することから放熱性に優れる。また、原料に用いる窒化ケイ素粉末の表面酸素量を高くすることで、強度にも優れる窒化ケイ素焼結体とすることができる。窒化ケイ素焼結体の熱伝導率は、例えば２５℃の環境下において１００Ｗ／ｍＫ以上であってよく、１１０Ｗ／ｍＫ以上であってもよい。窒化ケイ素焼結体の３点曲げ強さは、例えば室温で５００ＭＰａ以上であってよく、６００ＭＰａ以上であってもよい。

[0035] 以上、幾つかの実施形態について説明したが、本開示は上記実施形態に何ら限定されるものではない。

実施例

[0036] 実施例及び比較例を参照して本開示の内容をより詳細に説明するが、本開示は下記の実施例に限定されるものではない。

[0037] （実施例１）

＜窒化ケイ素粉末の調製＞

市販のケイ素粉末（比表面積：３．０m^2／ｇ）を、混酸中に浸漬して前処理を施した。前処理は、６０℃に温度調整した上記混酸中にケイ素粉末を入れ、２時間浸漬した。前処理に用いた混酸としては、市販の塩酸（濃度：３５質量％）と弗酸（濃度：５５質量％）とを、１０：１の質量比で配合したものを用いた。その後、混酸からケイ素粉末を取り出して水で洗浄し、窒素雰囲気下で乾燥した。乾燥後のケイ素粉末の酸素濃度は、０．４質量％であった。この酸素濃度は、赤外線吸収法によって測定した。

[0038] 乾燥後のケイ素粉末を用いて成形体（嵩密度：１．４ｇ／ｃm^3）を作製し、電気炉を用いて１４００℃で６０時間焼成して焼成し窒化ケイ素インゴットを作製した。焼成時の雰囲気は、窒素と水素の混合雰囲気（N_2：H_2＝８０：２０，体積基準）とした。得られたインゴットを粗粉砕した後、ボール

ミルで湿式粉砕した。湿式粉砕時の溶媒としては、水を用いた。

[0039] 湿式粉砕して得られた窒化ケイ素粉末を、温度６０℃の弗酸（弗化水素濃度：１５質量％）中に２時間浸漬する後処理を行った。その後、弗酸から窒化ケイ素粉末を取り出して水で洗浄し、窒素雰囲気下で乾燥した。このようにして、実施例１の窒化ケイ素粉末を得た。

[0040] ＜窒化ケイ素粉末の評価＞

窒化ケイ素粉末の内部酸素量と表面酸素量を以下の手順で測定した。酸素・窒素分析装置（堀場製作所製、装置名：ＥＭＧＡ－９２０）に、測定用の試料０．０１ｇをセットした。ヘリウムガスの雰囲気中、８℃／秒の昇温速度で２０℃から２０００℃まで昇温した。昇温中に、酸素及び窒素を検知した。測定結果を図２に示す。図２に示すとおり、表面酸素に由来するピーク１と、内部酸素の由来するピーク２と、窒素に由来するピーク３が検出された。直線４は温度を示している。

[0041] ピーク３が立ち上がる温度、すなわち、ピーク１とピーク２とを区画する温度T_1は、１３９２℃であった。ピーク１，２の積算値と、別途求めたピーク積算値と酸素量との検量線から、表面酸素量及び内部酸素量を求めた。その結果は、表１に示すとおりであった。

[0042] ＜窒化ケイ素焼結体の作製＞

調製した窒化ケイ素粉末９０質量部、平均粒径１．５μｍのY_2O_3粉末５質量部、及び、平均粒径１．２μｍのYb_2O_3粉末５質量部を配合し、メタノール中で４時間湿式混合した。その後、乾燥して得た混合粉末を１０ＭＰａの圧力で金型成形し、その後更に２５ＭＰａの圧力でＣＩＰ成形した。得られた成形体を、窒化ケイ素粉末及びＢＮ粉末の混合粉末からなる詰め粉とともにカーボン製坩堝にセットし、１ＭＰａの窒素加圧雰囲気下、温度１９００℃で１２時間焼成して窒化ケイ素焼結体を製造した。

[0043] ＜窒化ケイ素焼結体の評価＞

窒化ケイ素焼結体を研削加工して、熱伝導率測定用の１０ｍｍφ×３ｍｍの円盤体を作製した。レーザーフラッシュ法（ＪＩＳ　Ｒ１６１１に準拠）

により熱拡散率と比熱容量を測定し、焼結体の密度、熱拡散率及び比熱容量の積を算出して、室温における熱伝導率とした。また、ＪＩＳ　Ｒ１６０１：２００８に準じて強度測定用の試験片を作製し、室温における３点曲げ強さを測定した。測定結果は、実施例１の測定値を基準として、相対値で表１に示す。

[0044]（実施例２～８、比較例１～３）

前処理時の混酸への金属ケイ素粉末の浸漬時間を１～５時間の間で変更して表１に示すとおりにケイ素粉末の酸素濃度を変えたこと、及び、後処理に用いる弗酸の濃度（弗化水素の濃度）を表１に示すとおりに変更したこと以外は、実施例１と同様にして窒化ケイ素粉末を調製した。実施例４～８では、前処理時の混酸への金属ケイ素粉末の浸漬時間を、実施例１と同じ２時間とした。実施例２，３では、この浸漬時間を、それぞれ３時間，５時間とした。比較例１～３では、この浸漬時間を、１時間とした。実施例１と同様にして、各実施例及び各比較例の表面酸素量及び内部酸素量を求めた。また、内部酸素量に対する表面酸素量の比（表１では「表面／内部」と表示）を求めた。結果は表１に示すとおりであった。

[0045]　実施例１と同様にして、窒化ケイ素粉末を用いて窒化ケイ素焼結体を作製し、評価を行った。測定結果は、実施例１の測定値を基準とする相対値で表１に示す。

[0046] [表1]

	ケイ素粉末	後処理	窒化ケイ素粉末				窒化ケイ素焼結体	
	酸素濃度	弗酸濃度	内部酸素量	表面酸素量	表面／内部	全酸素量	熱伝導率	強度
	質量%	質量%	質量%	質量%		質量%	相対値	相対値
実施例1	0.4	15	0.6	0.6	1.0	1.2	1.00	1.00
実施例2	0.2	15	0.3	0.6	2.0	0.9	1.21	0.98
実施例3	0.1	15	0.2	0.6	3.0	0.8	1.30	0.97
実施例4	0.4	18	0.6	0.5	0.8	1.1	1.04	0.99
実施例5	0.4	20	0.6	0.3	0.5	0.9	1.08	0.96
実施例6	0.4	13	0.6	0.7	1.2	1.3	0.98	1.18
実施例7	0.4	10	0.6	0.9	1.5	1.5	0.96	1.35
実施例8	0.4	40	0.6	0.2	0.3	0.8	1.04	0.83
比較例1	0.6	15	0.7	0.6	0.9	1.3	0.82	1.02
比較例2	0.6	20	0.7	0.3	0.4	1.0	0.88	0.97
比較例3	0.6	10	0.7	0.9	1.3	1.6	0.83	1.30

産業上の利用可能性

[0047] 本開示によれば、高い熱伝導率を有する窒化ケイ素焼結体を得ることが可能な窒化ケイ素粉末及びその製造方法を提供することができる。また、高い熱伝導率を有する窒化ケイ素焼結体の製造方法を提供することができる。

請求の範囲

[請求項1] 内部酸素量が０．６質量％以下である窒化ケイ素粉末。

[請求項2] 表面酸素量が前記内部酸素量以下である、請求項１に記載の窒化ケイ素粉末。

[請求項3] 表面酸素量が前記内部酸素量よりも大きい、請求項１に記載の窒化ケイ素粉末。

[請求項4] 内部酸素量に対する表面酸素量の比が０．８以上である、請求項１～３のいずれか一項に記載の窒化ケイ素粉末。

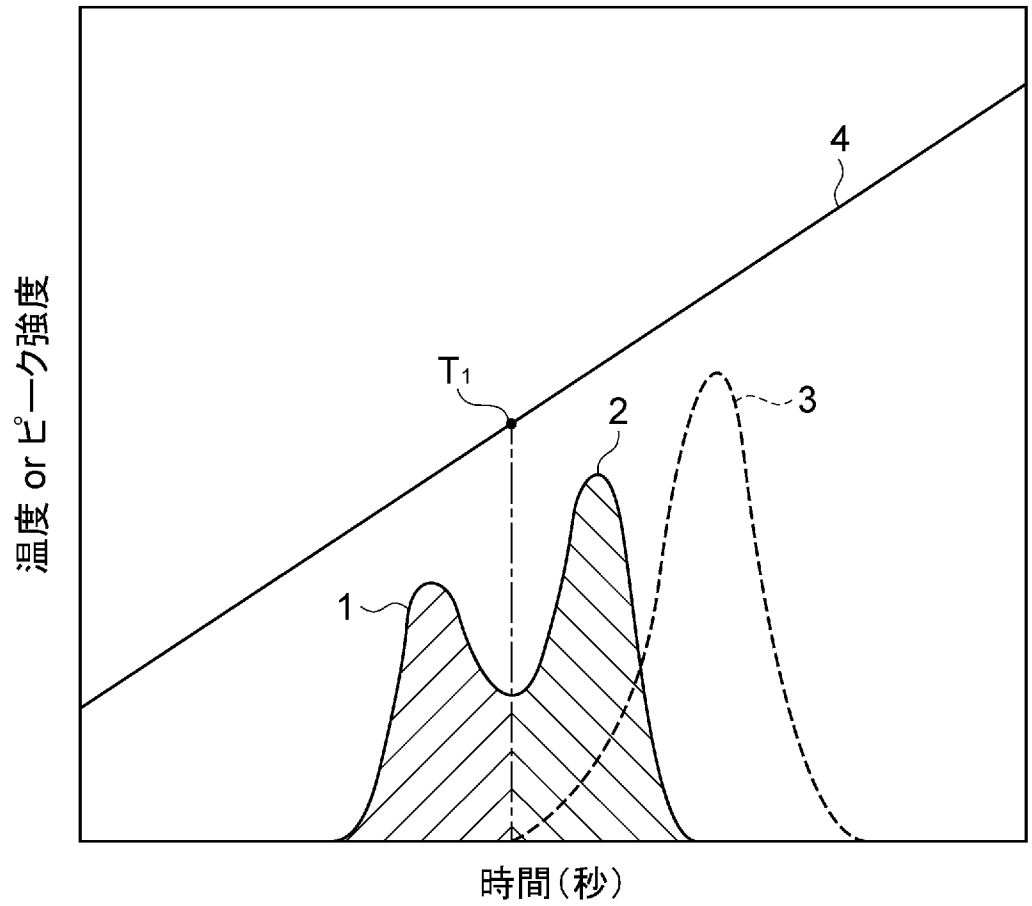
[請求項5] 酸素濃度が０．４質量％以下であるケイ素粉末を、窒素と水素及びアンモニアからなる群より選ばれる少なくとも一つとを含む混合雰囲気下で焼成して焼成物を得る工程と、

前記焼成物を弗化水素濃度が１０～４０質量％である弗酸で処理する工程と、を有する、窒化ケイ素粉末の製造方法。

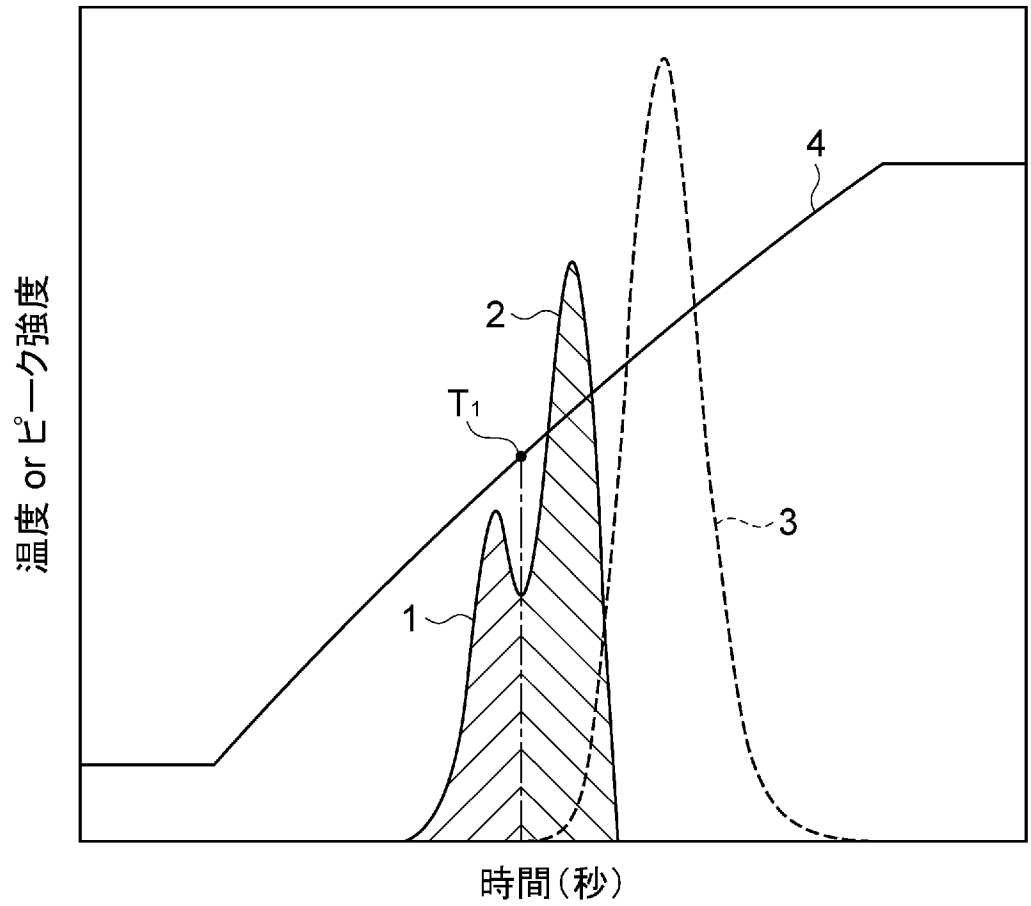
[請求項6] 内部酸素量が０．６質量％以下である、請求項５に記載の窒化ケイ素粉末の製造方法。

[請求項7] 請求項５又は６で製造される窒化ケイ素粉末を含む焼結原料を成形して焼成する工程を有する、窒化ケイ素焼結体の製造方法。

[図1]



[図2]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2020/013830

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int. Cl. C01B21/068(2006.01)i, C04B35/593(2006.01)i
FI: C01B21/068 D, C04B35/593 500

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)
Int. Cl. C01B21/068, C04B35/593

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 1971-2020
Registered utility model specifications of Japan 1996-2020
Published registered utility model applications of Japan 1994-2020

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 4-114908 A (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) 15 April 1992, examples 1-8	1-7 5-7
X Y	JP 1-197307 A (JAPAN METALS & CHEM CO., LTD.) 09 August 1989, example 5	1-4 5-7
X	WO 2013/146713 A1 (UBE INDUSTRIES, LTD.) 03 October 2013, examples 1-4, 6-12, comparative examples 2, 3, 10, 11, 13, 14, 16	1-4
X	JP 2000-302421 A (UBE INDUSTRIES, LTD.) 31 October 2000, examples 1-6, comparative examples 2-4	1, 2, 4

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☒ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
04.06.2020	16.06.2020
Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 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/JP2020/013830

Patent Documents referred to in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 4-114908 A	15.04.1992	(Family: none)	
JP 1-197307 A	09.08.1989	(Family: none)	
WO 2013/146713 A1	03.10.2013	US 2015/0056121 A1 examples 1-4, 6-12, comparative examples 2, 3, 10, 11, 13, 14, 16 EP 2832687 A1 CN 104203813 A KR 10-2014-0136002 A	
JP 2000-302421 A	31.10.2000	(Family: none)	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2020/013830

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

C01B 21/068(2006.01)i; C04B 35/593(2006.01)i
FI: C01B21/068 D; C04B35/593 500

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））

C01B21/068; C04B35/593

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	１９７１－２０２０年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２０年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２０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）

CAplus/REGISTRY (STN)

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	JP 4-114908 A (信越化学工業株式会社) 15.04.1992 (1992-04-15) 実施例1-8	1-7
Y		5-7
X	JP 1-197307 A (日本重化学工業株式会社) 09.08.1989 (1989-08-09) 実施例5	1-4
Y		5-7
X	WO 2013/146713 A1 (宇部興産株式会社) 03.10.2013 (2013-10-03) 実施例1-4, 6-12, 比較例2, 3, 10, 11, 13, 14, 16	1-4
X	JP 2000-302421 A (宇部興産株式会社) 31.10.2000 (2000-10-31) 実施例1-6, 比較例2-4	1, 2, 4

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☑ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー
"A" 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
"E" 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
"L" 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
"O" 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
"P" 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
"T" 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
"X" 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
"Y" 特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
"&" 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
04.06.2020	16.06.2020

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）
中田　光祐 4G 1146
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/JP2020/013830

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 4-114908 A	15.04.1992	（ファミリーなし）	
JP 1-197307 A	09.08.1989	（ファミリーなし）	
WO 2013/146713 A1	03.10.2013	US 2015/0056121 A1 実施例1-4，6-12，比較例2，3，10，11，13，14，16 EP 2832687 A1 CN 104203813 A KR 10-2014-0136002 A	
JP 2000-302421 A	31.10.2000	（ファミリーなし）	