

(19) 日本国特許庁(JP)

再公表特許(A1)

(11) 国際公開番号

W02020/158843

発行日 令和3年11月25日(2021.11.25)

(43) 国際公開日 令和2年8月6日(2020.8.6)

(51) Int.Cl. F 1 テーマコード(参考)  
**B 2 8 B 11/14 (2006.01)** B 2 8 B 11/14 4 G 0 5 5

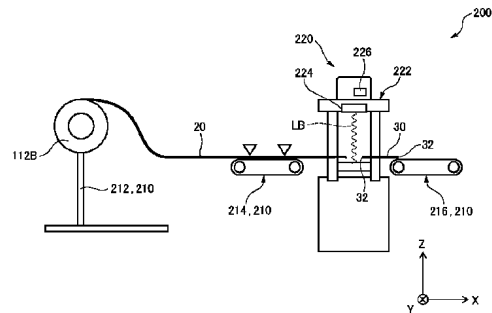
審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 19 頁)

<p>出願番号 特願2020-569712 (P2020-569712)</p> <p>(21) 国際出願番号 PCT/JP2020/003329</p> <p>(22) 国際出願日 令和2年1月30日(2020.1.30)</p> <p>(31) 優先権主張番号 特願2019-13761 (P2019-13761)</p> <p>(32) 優先日 平成31年1月30日(2019.1.30)</p> <p>(33) 優先権主張国・地域又は機関 日本国(JP)</p>	<p>(71) 出願人 000003296 デンカ株式会社 東京都中央区日本橋室町二丁目1番1号</p> <p>(74) 代理人 100110928 弁理士 速水 進治</p> <p>(72) 発明者 湯浅 晃正 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</p> <p>(72) 発明者 江嶋 善幸 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</p> <p>(72) 発明者 渡辺 龍平 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</p> <p style="text-align: right;">最終頁に続く</p>
---	---

(54) 【発明の名称】 枚葉グリーンシートの製造方法、窒化珪素質焼結体の製造方法、枚葉グリーンシート及び窒化珪素質焼結体

(57) 【要約】

本発明の枚葉グリーンシートの製造方法は、セラミックを含んで構成される帯状グリーンシートを、その長手方向に搬送する搬送工程と、搬送された前記帯状グリーンシートにレーザー光を照射することで前記帯状グリーンシートを切断して枚葉グリーンシートを得る照射工程と、を含む。



**【特許請求の範囲】****【請求項 1】**

セラミックを含んで構成される帯状グリーンシートにレーザー光を照射することで前記帯状グリーンシートを切断して枚葉グリーンシートを得る照射工程を含む枚葉グリーンシートの製造方法。

**【請求項 2】**

前記照射工程において前記帯状グリーンシートに照射されるレーザー光は、炭酸ガスレーザー光を照射する照射部から照射される、  
請求項 1 に記載の枚葉グリーンシートの製造方法。

**【請求項 3】**

前記帯状グリーンシートを、前記照射工程へ前記帯状グリーンシートの長手方向に沿って搬送する搬送工程を含む請求項 1 又は 2 に記載の枚葉グリーンシートの製造方法。

**【請求項 4】**

前記搬送工程の前に行う工程であって、セラミック粉末を含むスラリーをドクタープレート成形又は押出成形により帯状にして、前記帯状グリーンシートを得る工程、  
を含む請求項 3 に記載の枚葉グリーンシートの製造方法。

**【請求項 5】**

前記セラミック粉末は、窒化珪素粉末又は窒化アルミニウム粉末を含む、  
請求項 4 に記載の枚葉グリーンシートの製造方法。

**【請求項 6】**

請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載の枚葉グリーンシートの製造方法により製造された前記枚葉グリーンシートを加熱して焼結させて窒化珪素質焼結体を得る、  
窒化珪素質焼結体の製造方法。

**【請求項 7】**

少なくとも一つの側面がレーザー切断面である、  
枚葉グリーンシート。

**【請求項 8】**

前記レーザー切断面の表面粗さ  $R_a$  は、 $0.5 \mu\text{m}$  以上  $2.0 \mu\text{m}$  以下であり、  
前記レーザー切断面の表面粗さ  $R_z$  は、 $5.0 \mu\text{m}$  以上  $12.0 \mu\text{m}$  以下である、  
請求項 7 に記載の枚葉グリーンシート。

**【請求項 9】**

シート状であって、端面の表面粗さ  $R_a$  が  $0.5 \mu\text{m}$  以上  $2.0 \mu\text{m}$  以下であり、前記端面の表面粗さ  $R_z$  が  $5.0 \mu\text{m}$  以上  $12.0 \mu\text{m}$  以下である、  
窒化珪素質焼結体。

**【発明の詳細な説明】****【技術分野】****【0001】**

本発明は、枚葉グリーンシートの製造方法、窒化珪素質焼結体の製造方法、枚葉グリーンシート及び窒化珪素質焼結体に関する。

**【背景技術】****【0002】**

パワーモジュール用の回路基板の基材として、セラミック基板を用いることが知られている。また、このようなセラミック基板は、セラミックを含んで構成される帯状グリーンシートを切断し、切断して得られた枚葉グリーンシートを積層し、枚葉グリーンシートを積層した積層体を焼結して製造されている。

ここで、特許文献 1 には、セラミック製の帯状グリーンシートを切断して複数の枚葉グリーンシートを得る切断工程と、切断された複数の枚葉グリーンシートを積層する積層工程と、積層された複数の枚葉グリーンシートを焼結する焼結工程とを含むセラミック製の積層体の製造方法が開示されている。なお、上記の切断工程では、板状の切断刃を用いて帯状グリーンシートを切断して複数の枚葉グリーンシートを得ている。

10

20

30

40

50

【先行技術文献】

【特許文献】

【0003】

【特許文献1】特開2017-065059号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

前述のとおり、特許文献1に開示されている製造方法は、その切断工程において切断刃を用いて带状グリーンシートを切断する。そのため、この製造方法には、以下のような問題がある。すなわち、切断刃を用いた切断動作により枚葉グリーンシートの切断面から切屑が発生し、繰り返される切断動作により切断刃が摩耗して金属粉が発生する場合がある。そして、発生した切屑や金属粉が枚葉グリーンシートの表面へ付着したまま積層工程が行われると、枚葉グリーンシートに凹凸不良が発生する。また、切断刃を用いて带状グリーンシートを切断する際、切断刃はその刃先で带状グリーンシートを加圧しながら移動する。そのため、切断刃により切断されて形成される枚葉グリーンシートの切断面は、その刃先により引っ張られながら形成される。その結果、枚葉グリーンシートには、切断面付近からクラックが発生する場合がある。

10

以上のように、凹凸不良やクラックの発生は、結果としてセラミック基板の歩留りの低下という問題を招く。

【0005】

本発明は、带状グリーンシートを切断して枚葉グリーンシートを得る場合に、切断面からの切屑及び切断面付近でのクラックが発生し難く、切断刃からの金属粉が発生しない枚葉グリーンシートの製造方法の提供を目的とする。

20

【課題を解決するための手段】

【0006】

本発明の第1態様の枚葉グリーンシートの製造方法は、セラミックを含んで構成される带状グリーンシートを、その長手方向に搬送する搬送工程と、搬送された前記带状グリーンシートにレーザー光を照射することで前記带状グリーンシートを切断して枚葉グリーンシートを得る照射工程と、を含む。

【0007】

本発明の第2態様の枚葉グリーンシートの製造方法は、第1態様の枚葉グリーンシートの製造方法において、前記照射工程において前記带状グリーンシートに照射されるレーザー光は、炭酸ガスレーザー光を照射する照射部から照射される。

30

【0008】

本発明の第3態様の枚葉グリーンシートの製造方法は、第1又は第2態様の枚葉グリーンシートの製造方法において、前記搬送工程の前に行う工程であって、セラミック粉末を含むスラリーをドクターブレード成形又は押出成形により带状にして、前記带状グリーンシートを得る工程、を含む。

【0009】

本発明の第4態様の枚葉グリーンシートの製造方法は、第3態様の枚葉グリーンシートの製造方法において、前記セラミック粉末は、窒化珪素粉末又は窒化アルミニウム粉末を含む。

40

【0010】

本発明の窒化珪素質焼結体の製造方法は、第1～第4態様のいずれか一態様の枚葉グリーンシートの製造方法により製造された前記枚葉グリーンシートを加熱して焼結させて窒化珪素質焼結体を得る。

【0011】

本発明の第1態様の枚葉グリーンシートは、少なくとも一つの側面がレーザー切断面である。

【0012】

50

本発明の第2態様の枚葉グリーンシートは、第1態様の枚葉グリーンシートにおいて、前記レーザー切断面の表面粗さ $R_a$ は、 $0.5\mu\text{m}$ 以上 $2.0\mu\text{m}$ 以下であり、前記レーザー切断面の表面粗さ $R_z$ は、 $5.0\mu\text{m}$ 以上 $12.0\mu\text{m}$ 以下である。

【0013】

本発明の窒化珪素質焼結体は、シート状であって、端面の表面粗さ $R_a$ が $0.5\mu\text{m}$ 以上 $2.0\mu\text{m}$ 以下であり、前記端面の表面粗さ $R_z$ が $5.0\mu\text{m}$ 以上 $12.0\mu\text{m}$ 以下である。

【発明の効果】

【0014】

本発明の枚葉グリーンシートの製造方法によれば、帯状グリーンシートを切断して枚葉グリーンシートを得る場合に、切断面からの切屑及び切断面付近でのクラックが発生し難く、切断刃からの金属粉が発生しない。

10

【図面の簡単な説明】

【0015】

上述した目的、およびその他の目的、特徴および利点は、以下に述べる好適な実施の形態、およびそれに付随する以下の図面によってさらに明らかになる。

【0016】

【図1】本実施形態のセラミック基板の製造工程を示すフロー図である。

【図2A】本実施形態の成型工程を説明するための図であって、ドクターブレード成形装置を用いてスラリーから帯状グリーンシートを作製している状態を説明するための概略図である。

20

【図2B】本実施形態の切断工程を説明するための図であって、切断装置を用いて帯状グリーンシートを切断して枚葉グリーンシートを作製している状態を説明するための概略図（側面図）である。

【図2C】図2Bを正面側から見た概略図である。

【図2D】本実施形態の積層体の概略図である。

【図3】本実施形態の枚葉グリーンシートの切断面のSEM像である。

【図4】第1の試験の条件及び観察結果をまとめた表である。

【図5A】第1比較例の枚葉グリーンシートの切断面付近の拡大写真であって、厚み方向上面側から見た写真である。

30

【図5B】第1比較例の枚葉グリーンシートの切断面のSEM像である。

【図6】第2比較例の枚葉グリーンシートの切断面付近の拡大写真であって、厚み方向上面側から見た写真である。

【図7】第3比較例の枚葉グリーンシートの切断面付近の拡大写真であって、厚み方向上面側から見た写真である。

【図8】第4比較例の枚葉グリーンシートの切断面付近の拡大写真であって、厚み方向上面側から見た写真である。

【図9】本実施形態の枚葉グリーンシートの切断面付近の拡大写真であって、厚み方向上面側から見た写真である。

【図10】第3の試験の条件及び測定結果をまとめた表である。

40

【発明を実施するための形態】

【0017】

概要

まず、本実施形態の窒化珪素質焼結体40（図2D参照）の製造方法について、図面を参照しながら説明する。次いで、本実施形態の実施例について図面を参照しながら説明する。なお、以下の説明において参照するすべての図面において、同様な構成要素には同様の符号を付し、適宜説明を省略する。

【0018】

ここで、窒化珪素質焼結体40は、一例として、電気自動車、鉄道車両その他産業機器に搭載されるパワーモジュール用のセラミック基板である。窒化珪素質焼結体40は、一

50

例として、後述する枚葉グリーンシート30（図2B及び図2C参照）を積層した状態で焼結して得られる。また、枚葉グリーンシート30は、帯状グリーンシート20（図2A及び図2B参照）を切断して得られる。すなわち、窒化珪素質焼結体40と枚葉グリーンシート30との関係は、完成品と中間品（完成品になる前の工程で製造された物）との関係又は第1中間品と第2中間品（第1中間品になる前の工程で製造された物）との関係を有する。そのため、本実施形態の枚葉グリーンシート30は、後述する本実施形態の窒化珪素質焼結体40の製造方法の中間段階までの工程で製造される。そこで、本実施形態の枚葉グリーンシート30の製造方法については、本実施形態の窒化珪素質焼結体40の製造方法の説明の中で説明する。

#### 【0019】

本実施形態の窒化珪素質焼結体の製造方法

以下、本実施形態の窒化珪素質焼結体40の製造方法について、図1並びに図2A、図2B及び図2Cを参照しながら説明する。

本実施形態の窒化珪素質焼結体40の製造方法は、図1のフロー図に示されるように、スラリー作製工程と、成形工程と、切断工程と、堆積工程と、脱脂工程と、焼結工程とを含み、これらの記載順で行われる。

なお、図1のフロー図では、窒化珪素質焼結体40の製造方法を符号S10と表記し、スラリー作製工程、成形工程、切断工程、堆積工程、脱脂工程及び焼結工程を、それぞれ符号S11、S12、S13、S14、S15及びS16と表記する。

#### 【0020】

<スラリー作製工程>

まず、スラリー作製工程S11について説明する。本工程は、後述する原料粉末と有機溶剤とを混合して、スラリー10を作成する工程である。本工程で作製されたスラリー10（図2A参照）は、次の工程（成型工程）で帯状グリーンシート20に成形される。

#### 【0021】

スラリー10の原料粉末は、後述する主成分と焼結助剤とを含有する粉末である。主成分は一例として80重量%～98.3質量%の窒化珪素（ $\text{Si}_3\text{N}_4$ ）であり、焼結助剤は一例として1重量%～10質量%（酸化物換算）の少なくとも1種の希土類元素及び0.7重量%～10質量%（酸化物換算）のマグネシウム（Mg）である。窒化珪素の粉末の化率は、窒化珪素質焼結体40の密度、曲げ強度及び熱伝導率を考慮すると、好ましくは20%～100%である。ここで、本明細書で使用する「～」の意味について補足すると、例えば「20%～100%」は「20%以上100%以下」を意味する。そして、本明細書で使用する「～」は、「『～』の前の記載部分以上『～』の後の記載部分以下」を意味する。

#### 【0022】

窒化珪素（ $\text{Si}_3\text{N}_4$ ）の原料粉末における割合を一例として80重量%～98.3質量%とする理由は、得られる窒化珪素質焼結体40の曲げ強度及び熱伝導率が低すぎないこと、焼結助剤の不足による窒化珪素質焼結体40の緻密性を担保すること等による。

#### 【0023】

少なくとも1種の希土類元素の原料粉末における割合を1重量%～10質量%（酸化物換算）とする理由は、より少ないと窒化珪素粒子間の結合が弱くなってクラックが粒界を容易に伸展して曲げ強度が低くなり、より多いと粒界相の割合が多くなって熱伝導率が低下するためである。また、マグネシウム（Mg）の原料粉末における割合を0.7重量%～10質量%（酸化物換算）とする理由は、より少ないと低温で生成する液相が不十分であり、より多いとMgの揮発量が多くなり窒化珪素質焼結体40に空孔ができ易くなるためである。

#### 【0024】

ここで、Mgの含有量は好ましくは0.7重量%～7質量%（酸化物換算）であり、より好ましくは1重量%～5質量%である。また、少なくとも1種の希土類元素の含有量は好ましくは2重量%～10質量%（酸化物換算）である。以上より、 $\text{Si}_3\text{N}_4$ の含有量

10

20

30

40

50

は好ましくは83重量%～97.3質量%であり、より好ましくは90重量%～97質量%である。また、希土類元素としては、Y、La、Ce、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Lu等を使用することができるが、窒化珪素質焼結体40の高密度化の観点からYが好ましい。Mg及び少なくとも1種の希土類元素はそれぞれ酸化物粉末の形態で使用するのが好ましい。

以上より、焼結助剤は、MgO粉末とY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粉末との組合せであることが好ましい。

#### 【0025】

以下、説明の簡略化のために、窒化珪素の原料粉末をSi<sub>3</sub>N<sub>4</sub>粉末（別名は窒化珪素粉末、セラミック粉末の一例）、Mgの原料粉末をMgO粉末、希土類元素原料の粉末をY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粉末と表記する。ただし、前述の説明のとおりであるから、窒化珪素の原料粉末及び焼結助剤の原料粉末は、それぞれ、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>粉末並びにMgO粉末及びY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粉末でなくてもよい。

そして、前述のように配合されたSi<sub>3</sub>N<sub>4</sub>粉末、MgO粉末及びY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粉末と、可塑剤、有機バインダー及び有機溶剤とを混合して、スラリー10が作製される。そのため、本工程で作製されるスラリー10は、セラミック粉末を含む。ここで、可塑剤には、一例として、ジ-n-ブチルフタレート等のフタル酸系可塑剤、セバシン酸ジ2-エチルヘキシル等の二塩基酸系可塑剤等を使用する。また、有機バインダーには、一例として、エチルセルロース、ポリビニルブチラル、アクリル系バインダー等を使用する。さらに、有機溶剤には、一例として、エチルアルコール、トルエン、アセトン、MEK等を使用する。なお、本工程により作製されるスラリー10の固形分濃度は、次の工程（成型工程）での成形のし易さ等の観点から、30重量%～70質量%が好ましい。

#### 【0026】

以上が、スラリー作製工程についての説明である。

#### 【0027】

##### <成型工程>

次に、成型工程S12について説明する。本工程は、図2Aに示されるように、スラリー10から帯状グリーンシート20を作製する工程である。

#### 【0028】

本工程は、図2Aに示されるドクターブレード成形装置100を用いて行われる。ここで、ドクターブレード成形装置100は、ベルト搬送機構110と、成形ユニット120と、加熱ユニット130とを備えている。ベルト搬送機構110は、上流側のローラ112A、下流側のローラ112B及びベルト114を有し、下流側のローラ112を駆動させて、ベルト114を上流側のローラ112から下流側のローラ112に（X方向に沿って）移動させる。成形ユニット120は、ベルト114の上側（ベルト114よりもZ方向側）に配置され、ベルト114に対向している。成形ユニット120は、スラリー10を収容する収容部122とドクターブレード124とを有している。

#### 【0029】

そして、成形ユニット120は、図2Aに示されるように、自重と移動するベルト114との付着力とで収容部122から持ち出されるスラリー10を、ドクターブレード124により規制して定められた膜厚を有するシート状にする。加熱ユニット130は、定められた膜厚にされたベルト114上のスラリー10に温風WCを吹き付けてスラリー10をシートにする（有機溶剤を気化させる）。その結果、成型工程では、スラリー10から定められた幅（図中Y方向が幅方向に相当）の帯状グリーンシート20が作製される。すなわち、成型工程では、スラリー10をドクターブレード成形により帯状にして、一例としてSi<sub>3</sub>N<sub>4</sub>（セラミック）を含んで構成される帯状グリーンシート20を得る。

#### 【0030】

なお、本工程は、一例として、スラリー作製工程S11で作製されたスラリー10の脱泡をし、かつ、スラリー10を増粘させた後に行われる。また、本工程で作製される帯状グリーンシート20の膜厚は、最終的に製造される窒化珪素質焼結体40の膜厚を考慮して設定される。これに伴い、スラリー10を定められた膜厚に規制するためのドクターブ

10

20

30

40

50

レード124の規制条件(ベルト114との離間距離等)も最終的に製造される窒化珪素質焼結体40の膜厚を考慮して設定される。ここで、設定される帯状グリーンシート20の膜厚は、最終的に製造される窒化珪素質焼結体40の膜厚に応じて、一例として0.25mm~1mmに設定されるが、好ましくは0.25mm~0.9mm、より好ましくは0.25~0.8mmである。

【0031】

以上が、成形工程についての説明である。

【0032】

<切断工程>

次に、切断工程S13について説明する。本工程は、図2Bに示されるように、帯状グリーンシート20を切断して枚葉グリーンシート30を作製する工程である。

10

【0033】

本工程は、図2Bに示される切断装置200を用いて行われる。ここで、切断装置200は、シート搬送機構210と、切断部220とを備えている。

シート搬送機構210は、支持部212と、第1搬送部214と、第2搬送部216とを有している。支持部212は、成形工程で作製された帯状グリーンシート20が外周面に巻き付けられているローラ112B(図2A及び図2B参照)を回転可能に支持する。第1搬送部214は、支持部212から搬送された帯状グリーンシート20の姿勢を整えて帯状グリーンシート20をX方向に沿って(帯状グリーンシート20の長手方向に沿って)切断部220に搬送する。第2搬送部216は、切断部220で帯状グリーンシート20が切断されて作製された枚葉グリーンシート30を更に下流に(X方向に)搬送する。

20

また、切断部220は、筐体222と、照射部224と、移動機構226とを有している。照射部224は、一例として、炭酸ガスレーザー光LB(レーザー光の一例)を照射する。移動機構226は、照射部224を帯状グリーンシート20の短手方向(図中Y方向)の一端から他端に亘って走査させる。照射部224及び移動機構226は、筐体222に取り付けられている。

【0034】

そして、本実施形態の切断装置200は、シート搬送機構210により帯状グリーンシート20を枚葉グリーンシート30の長さ分搬送して帯状グリーンシート20を停止させ、切断部220により帯状グリーンシート20を切断する。この場合、切断部220は、移動機構226により照射部224をY方向に沿って帯状グリーンシート20の短手方向の一端側から他端側に亘って移動させながら、照射部224に炭酸ガスレーザー光LBを照射させる。また、移動機構226により走査される照射部224は、炭酸ガスレーザー光LBを間欠的に照射する。ここで、「間欠的に」とは、一定期間照射することと一定期間照射しないこととを繰り返すことを意味する。そのため、移動機構226は、照射部224が移動と停止とを繰り返すようにして、照射部224を走査させる。

30

以上のようにして、本工程では、帯状グリーンシート20に炭酸ガスレーザー光LBを照射することで帯状グリーンシート20を切断して枚葉グリーンシート30を得る。また、本工程は、シート搬送機構210による帯状グリーンシート20を搬送する工程(搬送工程)と、切断部220による帯状グリーンシート20を切断して枚葉グリーンシート30を得る工程(照射工程)とを含む工程でもある。

40

【0035】

本工程の説明では、レーザー光LBの一例が炭酸ガスレーザー光LBであるとしたが、照射部224が照射する光はレーザー光であれば炭酸ガスレーザー光LBの波長と異なる波長のレーザー光でもよい。例えば、赤外線レーザー光LB(IRレーザー光LB)、紫外線レーザー光LB(UVレーザー光LB)等でもよい。ただし、本工程のように、照射部224が照射するレーザー光LBは、炭酸ガスレーザー光LBであることが好ましい。この理由については後述する実施例の説明の中で説明する。なお、図3は、本実施形態の切断工程により作製された枚葉グリーンシート30の切断面32(レーザー切断面の一例

50

)のSEM像であるが、このSEM像の詳細についても後述する実施例の説明の中で説明する。

【0036】

以上が、切断工程についての説明である。

【0037】

<堆積工程>

次に、堆積工程S14について説明する。本工程は、図2Dに示されるように、複数の帯状グリーンシート20をその膜厚方向に重ねる工程である。本工程は、後の工程(焼結工程S16)で効率的に枚葉グリーンシート30を焼結させるために行われる工程である。

10

【0038】

本工程では、図2Dに示されるように、複数の枚葉グリーンシート30を、後述する非反応性粉末層(図示省略)を介して堆積する。ここで、枚葉グリーンシート30を重ねる枚数が少ないと、後の焼結工程S16において焼結炉(図示省略)で一度に処理できる枚数が少なくなる(生産効率が低くなる)。これに対して、枚葉グリーンシート30を重ねる枚数が多いと、次の工程(脱脂工程S15)において枚葉グリーンシート30に含まれるバインダーが分解し難くなる。以上の理由により、本工程において枚葉グリーンシート30を重ねる枚数は8枚~100枚、好ましくは30枚~70枚である。

【0039】

また、本実施形態の非反応性粉末層は、一例として、膜厚が約1 $\mu$ m~20 $\mu$ mの窒化硼素粉末層(BN粉末層)である。BN粉末層は、後の工程(焼結工程S16)後の窒化珪素質焼結体40を容易に分離させる機能を有する。BN粉末層は、BN粉末のスラリーとして、各枚葉グリーンシート30の一面に、例えばスプレー、ブラシ塗布、ロールコーター、スクリーン印刷等によって塗布される。なお、BN粉末は85%以上の純度で、好ましくは平均粒径が1 $\mu$ m~20 $\mu$ mである。

20

【0040】

以上が、堆積工程についての説明である。

【0041】

<脱脂工程>

次に、脱脂工程S15について説明する。本工程は、枚葉グリーンシート30に含まれるバインダー及び可塑剤を、次の工程(焼結工程S16)の前に脱脂するための工程である。

30

本工程では、一例として、堆積工程S14で重ねた複数の枚葉グリーンシート30(図2D参照)を450~750の温度環境下で、0.5時間~20時間保持する。その結果、複数の枚葉グリーンシート30に含まれるバインダー及び可塑剤が脱脂される。

【0042】

以上が、脱脂工程についての説明である。

【0043】

<焼結工程>

次に、焼結工程S16について説明する。本工程は、堆積工程S14で重ねられた複数の枚葉グリーンシート30(以下、図2Dの複数の枚葉グリーンシート30という。)を、焼結装置(図示省略)を用いて焼結させる工程である。

40

【0044】

焼結装置は、焼結炉と、焼結炉の温度を制御する制御装置とを備えている。焼結炉は、ヒーターと温度計とを有している。そして、本工程では、図2Dの複数の枚葉グリーンシート30を焼結炉に収容して、制御装置により一例としてヒーターを後述する温度制御プログラムに従って制御する。

【0045】

ここで、温度制御プログラムとは、制御装置が有する記憶装置(例えば、ROM等)に記憶され、焼結炉が有する温度計の温度情報に基づく温度プロファイルを参照しながらヒ

50



ーターの温度制御を行う（例えば、PID制御等）ためのプログラムである。具体的には、温度制御プログラムは、焼結炉内の温度プロファイルを、徐熱域を有する昇温域と、温度保持域と、冷却域とで構成され、これらの記載順で進行するプロファイルにするプログラムである。以下、徐熱域、温度保持域及び冷却域の技術的意義について説明する。

#### 【0046】

##### 〔温度保持域〕

温度保持域は、徐熱域で生成された液相から、窒化珪素粒子の再配列、型窒化珪素結晶の生成及び窒化珪素結晶の粒成長を増進させ、焼結体を更に緻密化させるための温度域である。

温度保持域の温度は、型窒化珪素粒子の大きさ及びアスペクト比（長軸と短軸の比）、焼結助剤の揮発による空孔の形成等を考慮して、1600～2000の範囲内の温度とし、保持時間を1時間～30時間とするのが好ましい。温度保持域の温度が1600未満であると、窒化珪素質焼結体40が緻密化し難い。これに対して、温度が2000を超えると、焼結助剤の揮発及び窒化珪素の分解が激しくなり、窒化珪素質焼結体40が緻密化し難い。なお、温度保持域の温度が1600～2000の範囲内の温度であれば、温度保持域での加熱温度は時間に対して変化するように設定してもよい（例えば徐々に昇温するように設定してもよい）。

ここで、温度保持域の温度はより好ましくは1750～1950の範囲内の温度であり、更に好ましくは1790～1890の範囲内の温度である。さらに、温度保持域の温度は徐熱域の温度の上限より50以上高いことが好ましく、100～300以上高いことがより好ましい。温度保持域の保持時間は2時間～20時間がより好ましく、3時間～10時間が更に好ましい。

#### 【0047】

以上が、焼結工程についての説明である。また、以上が、本実施形態の窒化珪素質焼結体40の製造方法についての説明である。

#### 【0048】

##### 実施例

次に、本実施形態の実施例（本実施形態の好ましい形態を導き出した試験）について図面を参照しながら説明する。ここで、本実施形態の好ましい形態を導き出した試験は、以下に説明する第1の試験、第2の試験及び第3の試験である。なお、前述の本実施形態の効果については、後述する各試験の結果の考察の中で説明する。

#### 【0049】

##### <第1の試験>

以下、第1の試験について説明する。

#### 【0050】

##### 〔第1の試験の方法〕

本試験では、本実施形態の切断工程S13により作製された枚葉グリーンシート30の切断部分の写真と、以下に説明する比較例（第1～第4比較例）の切断工程により作製された枚葉グリーンシートの切断部分の写真を観察する試験を行った。具体的には、本実施形態の枚葉グリーンシート30のサンプル及び第1～第4比較例の枚葉グリーンシートのサンプルの切断部分（切断面及びその周辺部分）を、それぞれ下面側から撮影して観察した。そして、各サンプルの拡大写真を観察して切断面に切断屑及びバリが有無を確認した。その結果、切断屑及びバリの少なくとも一方が有るサンプルを不合格、両方が無いサンプルを合格とした。

ここで、第1比較例の枚葉グリーンシート（図5A及び図5B参照）は、押し出し刃（図示省略）により带状グリーンシート20を切断して作製したものとした。第2比較例の枚葉グリーンシート（図6参照）は、トムソン刃（図示省略）により带状グリーンシート20を切断して作製したものとした。第3比較例の枚葉グリーンシート（図7参照）は、シャーリング（図示省略）により带状グリーンシート20を切断して作製したものとした。第4比較例の枚葉グリーンシート（図8参照）は、超音波カッター（図示省略）により

10

20

30

40

50

帯状グリーンシート20を切断して作製したものとした。なお、本実施形態の枚葉グリーンシート30は、照射部224（図2B及び図2C参照）に赤外線レーザー（IRレーザー）を用いて作製した。

#### 【0051】

〔第1の試験の結果及び考察〕

図4は、本試験の各サンプルの条件及び観察結果をまとめた表である。

第1～第4比較例は、いずれの場合も不合格であった。ここで、第1比較例（押し出し刃）は、切断屑が観察された（図4、図5A及び図5B参照）。第2比較例（トムソン刃）は、バリが観察された（図4及び図6参照）。第3比較例（シャーリング）は、切断屑が観察された（図4及び図7参照）。第4比較例（超音波カッター）は、切断屑が観察された（図4及び図8参照）。

10

本実施形態（レーザー）は、合格であった（図3、図4及び図9参照）。

第1～第4比較例は、いずれも接触式の切断手段により作製されたため、切断時に破断面が発生した結果と推考される。これに対して、本実施形態は、非接触式の切断手段により作製されるため、第1～第4比較例の場合のように切断時に破断面が発生しない（又はし難い）結果と推認される。

#### 【0052】

以上より、本実施形態の枚葉グリーンシート30の製造方法によれば、帯状グリーンシート20を切断して枚葉グリーンシート30を得る場合に、切断面からの切屑が発生しない（又はし難い）。また、本実施形態の枚葉グリーンシート30の製造方法によれば、切断時に破断面が発生しない（又はし難い）ことに伴い、切断面付近でのクラックも発生しない（又はし難い）。なお、本実施形態の枚葉グリーンシート30の製造方法は、切断時に切断刃を用いることがないため、切断刃からの金属粉が発生しない。これらに伴い、本実施形態の窒化珪素質焼結体40の製造方法によれば、切断工程を接触式の切断手段を用いる場合に比べて、歩留りが高い。

20

#### 【0053】

以上が、第1の試験についての説明である。

#### 【0054】

<第2の試験>

次に、第2の試験について説明する。

30

#### 【0055】

〔第2の試験の方法〕

本試験では、照射部224（図2B及び図2C参照）として、炭酸ガスレーザー、赤外線レーザー（IRレーザー）及び紫外線レーザー（UVレーザー）を用いて枚葉グリーンシート30を作製し、切断面32（図2B及び図3参照）の観察と、切断動作にかかる時間（加工時間）とを比較した。

ここで、炭酸ガスレーザーのレーザー光LBの中心波長は9360nm及び10600nmであり、赤外線レーザーのレーザー光LBの中心波長は1064nmであり、紫外線レーザーのレーザー光LBの中心波長は355nmであった。

40

#### 【0056】

〔第2の試験の結果及び考察〕

いずれの場合も切断面32（レーザー切断面）に切断屑及びバリの発生は観察されなかった（図4の表に示す第1の試験の結果と同様の結果）。また、同じ出力における加工時間は、炭酸ガスレーザー、赤外線レーザー、紫外線レーザーの順で短かった（試験結果のグラフ等は省略）。

以上より、本実施形態の切断工程S13では、いずれのレーザーを照射部224に用いた場合であっても、切断面32からの切屑及びバリが発生しない（又はし難い）。しかしながら、加工時間の短縮化の点では、炭酸ガスレーザー、赤外線レーザー、紫外線レーザーの順で好ましいといえる。

なお、赤外線レーザーと紫外線レーザーとでは、前者の方が後者よりも加工速度が短い

50

結果となったが、その理由は以下のとおりと推認される。すなわち、帯状グリーンシート 20 の切断は光加工より熱加工の方が優先的であり、赤外線レーザーからのレーザー光 LB は、紫外線レーザーからのレーザー光 LB に比べて、より熱に変換されやすいためと推認される。ここで、帯状グリーンシート 20 のバンドギャップは約 5.0 eV であるところ紫外線レーザーのバンドギャップは中心波長 355 nm に相当する 3.5 eV であるため、紫外線レーザーからのレーザー光 LB は帯状グリーンシート 20 を十分に光励起し難いためと推認される。

【0057】

以上が、第 2 の試験についての説明である。

【0058】

10

< 第 3 の試験 >

次に、第 3 の試験について説明する。

【0059】

〔第 3 の試験の方法〕

本試験では、本実施形態の切断工程 S 13 により切断した 3 枚の枚葉グリーンシート 30 を焼結工程 S 16 により焼結させた各サンプルと、切断工程でプレス加工（押し出し刃）を用いて切断し 3 枚の枚葉グリーンシートを焼結工程 S 16 により焼結させた各サンプルとを作製した。次いで、これらのサンプルの表面粗さ Ra、Ry、Rz を、JIS B 0601 - 1994 に基づいて測定した。

ここで、本実施形態の各サンプルの切断工程 S 13 での切断は、それぞれ、炭酸ガスレーザー、赤外線レーザー及び紫外線レーザーを用いた。

20

【0060】

〔第 3 の試験の結果及び考察〕

図 10 の表は、第 3 の試験の条件及び測定結果をまとめた表である。本試験は、各サンプルの表面粗さ Ra、Ry、Rz の測定結果から各サンプルの良し悪しを特定するための試験ではない。しかしながら、第 1 の試験の結果から、本実施形態の切断工程 S 13 を含む工程で製造された窒化珪素質焼結体 40 は、図 10 の表における、炭酸ガスレーザー、赤外線レーザー及び紫外線レーザーを用いた各サンプルの測定結果を満たすものといえる。

以上より、本実施形態の窒化珪素質焼結体 40 は、端面 42（図 2D 参照、別言すると、焼結後のレーザー切断面又はレーザー切断面の焼結面）の表面粗さ Ra が 0.5 μm 以上 2.0 μm 以下であり、端面 42 の表面粗さ Rz が 5.0 μm 以上 12.0 μm 以下であることが好ましいといえる。これに伴い、本実施形態の枚葉グリーンシート 30 は、切断面 32（図 2B 及び図 3 参照）の表面粗さ Ra が 0.5 μm 以上 2.0 μm 以下であり、切断面 32 の表面粗さ Rz が 5.0 μm 以上 12.0 μm 以下であることが好ましいといえる。

30

【0061】

以上が、本実施形態の実施例についての説明である。

【0062】

以上のとおり、本実施形態を本発明の一例として説明したが、本発明は本実施形態に限定されるものではない。本発明の技術的範囲には、例えば、下記のような形態（変形例）も含まれる。

40

【0063】

例えば、本実施形態の説明では、セラミック粉末の一例を窒化珪素質として説明した。しかしながら、セラミック粉末の一例は他のセラミック粉末でもよい。例えば、窒化アルミニウムでもよい。

【0064】

また、本実施形態の成形工程 S 12 の説明では、ドクターブレード成形を用いて行うとした。しかしながら、スラリー 10 を帯状グリーンシート 20 に成形することができれば、成形方法は他の方法であってもよい。例えば、押出成形であってもよい。

50

【 0 0 6 5 】

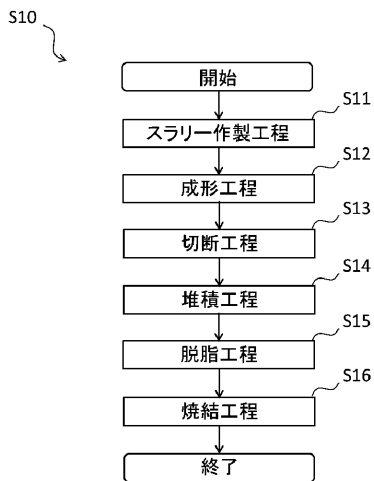
また、本実施形態の切断工程 S 1 3 の説明では、照射部 2 2 4 を带状グリーンシート 2 0 の短手方向の一端側から他端側に亘って移動させながら、带状グリーンシート 2 0 を切断するとした。しかしながら、結果として带状グリーンシート 2 0 を切断して枚葉グリーンシート 3 0 を得ることができれば、带状グリーンシート 2 0 の切断箇所が本実施形態の場合のように带状グリーンシート 2 0 の短手方向の一端側から他端側に亘る直線部分でなくてもよい。例えば、带状グリーンシート 2 0 に枚葉グリーンシート 3 0 の形をした穴を開けることで带状グリーンシート 2 0 から枚葉グリーンシート 3 0 を分離する（又はくり抜く）ように、带状グリーンシート 2 0 を切断してもよい。すなわち、带状グリーンシート 2 0 を切断して得られる枚葉グリーンシート 3 0 は、その全端面の少なくとも一部が切断面であればよい。

10

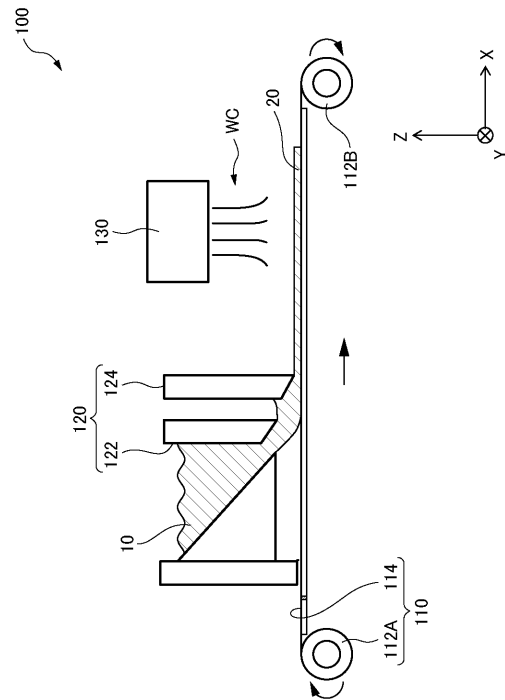
【 0 0 6 6 】

この出願は、2019年1月30日に出願された日本出願特願2019-013761号を基礎とする優先権を主張し、その開示の全てをここに取り込む。

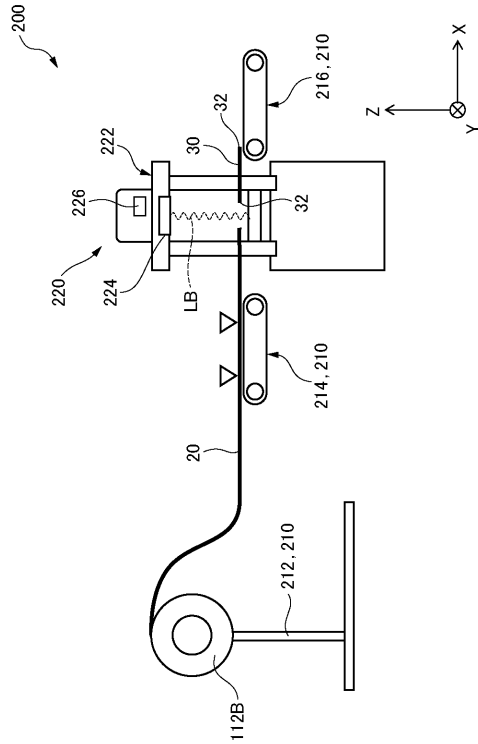
【 図 1 】



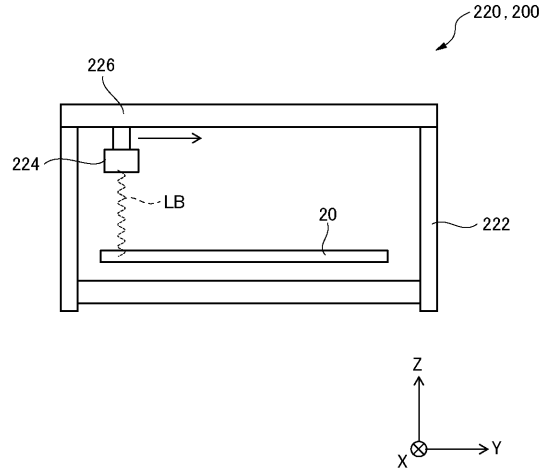
【 図 2 A 】



【図 2 B】

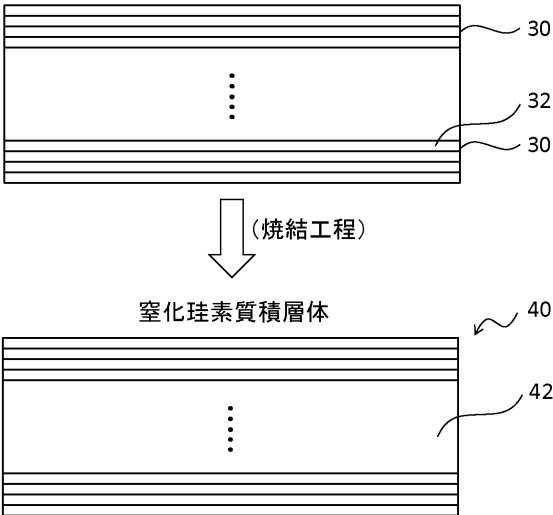


【図 2 C】

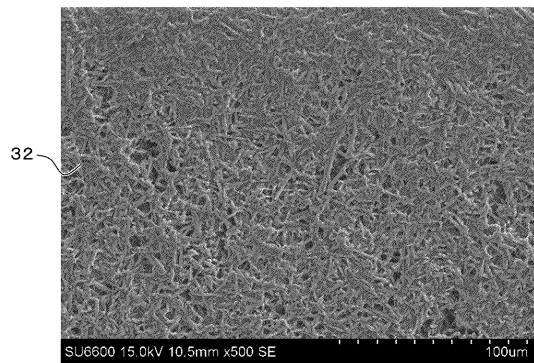


【図 2 D】

堆積工程で重ねた複数の枚葉グリーンシート



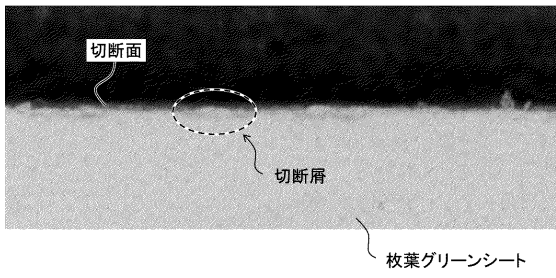
【図 3】



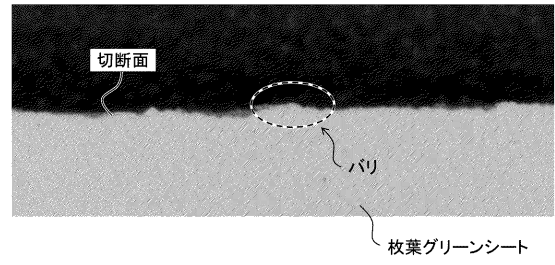
【図 4】

サンプル名	切剥方法	切剥層	バリ	結果
本実施形態	レーザー	無	無	合格
第1比較例	押し出し刃	有	無	不合格
第2比較例	トムソン刃	無	有	不合格
第3比較例	シャーリング	有	無	不合格
第4比較例	超音波カッター	有	無	不合格

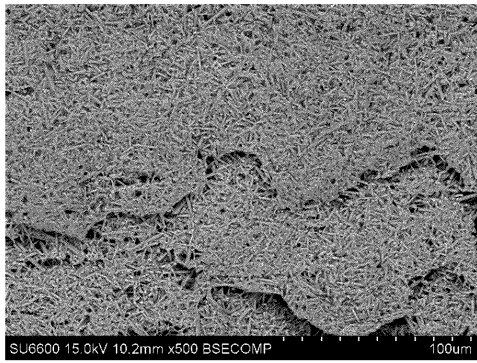
【 図 5 A 】



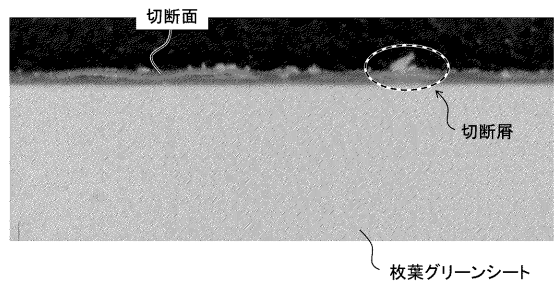
【 図 6 】



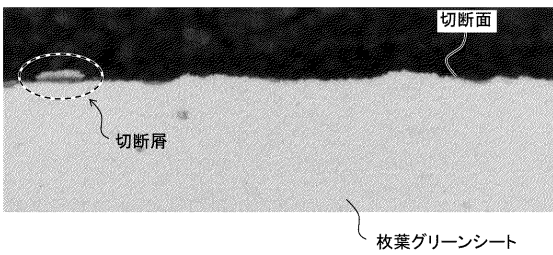
【 図 5 B 】



【 図 7 】



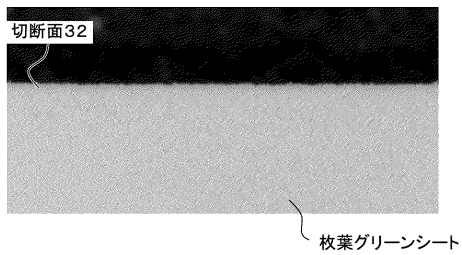
【 図 8 】



【 図 10 】

各サンプル	Ra(μm)	Ry(μm)	Rz(μm)
炭酸ガスレーザー	0.91	8.0	6.5
赤外線レーザー	1.41	11.4	10.0
紫外線レーザー	1.22	10.8	8.9
押し出し刃	3.07	19.7	16.6
押し出し刃	2.36	31.1	16.1
押し出し刃	2.80	16.5	14.2

【 図 9 】



## 【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/JP2020/003329
<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> Int. Cl. B28B11/14 (2006.01) i FI: B28B11/14  According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b> Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int. Cl. B28B11/14  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)		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2004-235544 A (MURATA MFG. CO., LTD.) 19 August	1, 7-8
Y	2004, paragraphs [0026], [0060], paragraphs [0026], [0060]	2-6, 9
X	JP 2005-123288 A (TDK CORP.) 12 May 2005,	1-3, 7-8
Y	paragraphs [0023]-[0026], [0033], fig. 5, paragraphs [0023]-[0026], [0033], fig. 5	2-6, 9
Y	JP 2009-144079 A (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 02 July 2009, paragraphs [0003], [0037]	4-6, 9
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 19.03.2020		Date of mailing of the international search report 31.03.2020
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/JP2020/003329

Patent Documents referred to in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 2004-235544 A	19.08.2004	(Family: none)	
JP 2005-123288 A	12.05.2005	US 2005/0081987 A1 paragraphs [0037]- [0042], [0048], fig. 5 KR 10-2005-0036775 A CN 1607617 A	
JP 2009-144079 A	02.07.2009	(Family: none)	



## 国際調査報告

国際出願番号

PCT/JP2020/003329

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） B28B 11/14(2006.01)i FI: B28B11/14		
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）） B28B11/14 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）		
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 2004-235544 A (株式会社村田製作所) 19.08.2004 (2004-08-19) [0026]、[0060]	1,7-8
Y	[0026]、[0060]	2-6,9
X	JP 2005-123288 A (TDK株式会社) 12.05.2005 (2005-05-12) [0023] - [0026]、[0033]、図5	1-3,7-8
Y	[0023] - [0026]、[0033]、図5	2-6,9
Y	JP 2009-144079 A (積水化学工業株式会社) 02.07.2009 (2009-07-02) [0003]、[0037]	4-6,9
<input type="checkbox"/> C権の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー	"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 "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 "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 "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） "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 "O" 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 "G" 同一パテントファミリー文献 "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	
国際調査を完了した日 19.03.2020	国際調査報告の発送日 31.03.2020	
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） 手島 理 4T 5083 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/JP2020/003329

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2004-235544 A	19.08.2004	(ファミリーなし)	
JP 2005-123288 A	12.05.2005	US 2005/0081987 A1 [0037] - [0042]、[0048]、図5 KR 10-2005-0036775 A CN 1607617 A	
JP 2009-144079 A	02.07.2009	(ファミリーなし)	

## フロントページの続き

(81)指定国・地域 AP(BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), EP(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), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG), 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

(72)発明者 小橋 聖治

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

(72)発明者 西村 浩二

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

Fターム(参考) 4G055 AA08 AB01 AB03 BB14

(注)この公表は、国際事務局(WIPO)により国際公開された公報を基に作成したものである。なおこの公表に係る日本語特許出願(日本語実用新案登録出願)の国際公開の効果は、特許法第184条の10第1項(実用新案法第48条の13第2項)により生ずるものであり、本掲載とは関係ありません。