



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公告本

(11)證書號數：TW I507350 B

(45)公告日：中華民國 104 (2015) 年 11 月 11 日

(21)申請案號：100131765 (22)申請日：中華民國 100 (2011) 年 09 月 02 日
 (51)Int. Cl. : C01B21/072 (2006.01) C04B35/581 (2006.01)
 (30)優先權：2010/09/03 日本 2010-198234
 (71)申請人：德山股份有限公司 (日本) TOKUYAMA CORPORATION (JP)
 日本
 (72)發明人：宗岡孝俊 MUNEOKA, TAKATOSHI (JP)；渡邊一孝 WATANABE, KAZUTAKA
 (JP)
 (74)代理人：周良謀；周良吉
 (56)參考文獻：
 TW 200738554 JP 2005-162555A
 US 4,615,863
 審查人員：廖學章
 申請專利範圍項數：1 項 圖式數：1 共 21 頁

(54)名稱

球狀氮化鋁粉末

SPHERICAL ALUMINUM NITRIDE POWDER

(57)摘要

本發明提供一種高熱傳導性及優良填充性，適合作為散熱材料用填料的球狀氮化鋁粉末及其製造方法。該球狀氮化鋁粉末之特徵為：由平均粒子徑 3 ~ 30 μ m、真球度 0.75 以上、氧含有量 1 重量%以下，且使該平均粒子徑為 d(μ m)時，比表面積 S(m²/g)滿足下式(1)的氮化鋁粒子所構成。

$$(1.84/d) \leq S \leq (1.84/d + 0.5) \quad (1)$$

To provide a spherical aluminum nitride powder featuring high heat conductivity and filling property, and is useful as a filler for a heat radiating material, and a method of producing the same.

A spherical aluminum nitride powder comprising aluminum nitride particles having an average particle diameter of 3 to 30 μ m, a sphericalness of not less than 0.75, an oxygen content of not more than 1% by weight wherein, when the average particle diameter is d (μ m), the specific surface area S (m²/g) satisfies the following formula (1),

$$(1.84/d) \leq S \leq (1.84/d + 0.5) \quad \text{---(1)}$$

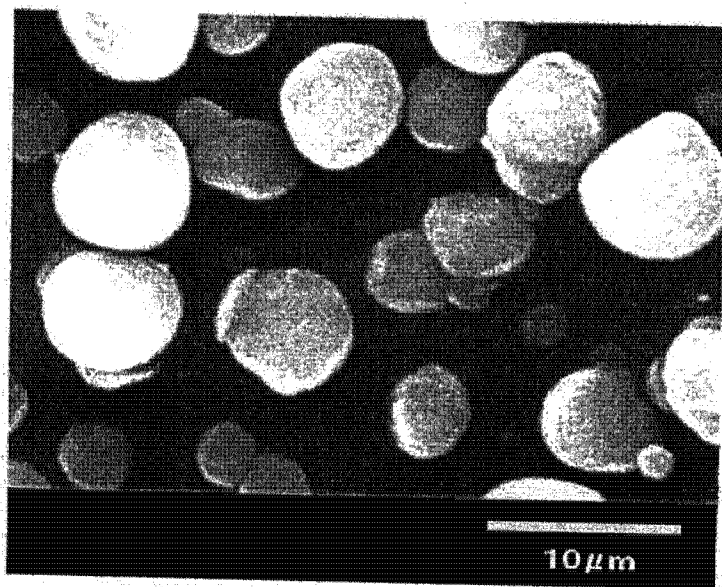


圖 1

發明專利說明書

公告本

(本說明書格式、順序，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：100131765

※申請日：100.9.2

※IPC 分類：

C01B 21/072

C04B 35/581

2006.01)

2006.01)

一、發明名稱：(中文/英文)

球狀氮化鋁粉末/SPHERICAL ALUMINUM NITRIDE POWDER

二、中文發明摘要：

本發明提供一種高熱傳導性及優良填充性，適合作為散熱材料用填料的球狀氮化鋁粉末及其製造方法。

該球狀氮化鋁粉末之特徵為：由平均粒子徑 3~30 μm 、真球度 0.75 以上、氧含有量 1 重量%以下，且使該平均粒子徑為 $d(\mu\text{m})$ 時，比表面積 $S(\text{m}^2/\text{g})$ 滿足下式(1)的氮化鋁粒子所構成。

$$(1.84/d) \leq S \leq (1.84/d + 0.5) \quad (1)$$

三、英文發明摘要：

To provide a spherical aluminum nitride powder featuring high heat conductivity and filling property, and is useful as a filler for a heat radiating material, and a method of producing the same.

A spherical aluminum nitride powder comprising aluminum nitride particles having an average particle diameter of 3 to 30 μm , a sphericalness of not less than 0.75, an oxygen content of not more than 1% by weight wherein, when the average particle diameter is d (μm), the specific surface area S (m^2/g) satisfies the following formula (1),

$$(1.84/d) \leq S \leq (1.84/d + 0.5) \quad \text{--- (1)}$$

四、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：第 (1) 圖。

(二)本代表圖之元件符號簡單說明：無。

五、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：
無。

六、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

本發明係關於一種，宜作為填充於樹脂、潤滑脂、黏接劑、塗料等以提高散熱性之散熱材料用填料的氮化鋁粉末及其製造方法。

【先前技術】

因氮化鋁具有優良電性絕緣性，且具有高熱傳導性，而期待填充有其燒結體、或粉末之樹脂、潤滑脂、黏接劑、塗料等的材料，成為具有高熱傳導性之散熱材料。

為提高上述散熱材料之熱傳導率，於樹脂等之基質中使具有高熱傳導性之填料高填充一事係為重要。是故，強烈希望為球狀、粒徑為數 μm ~數十 μm 左右之氮化鋁粉末。

一般而言，氮化鋁粉末之製法，已知有：將氧化鋁與碳之組成物還原氮化之氧化鋁還原氮化法、使鋁與氮直接反應之直接氮化法、使烷基鋁與氮反應後，將其加熱之氣相等。其中，現狀下以還原氮化法及氣相等法獲得之氮化鋁粉末，僅獲得形狀接近球狀，但其粒徑為次微米級者。

另一方面，由直接氮化法獲得之氮化鋁粉末，因係以粉碎、分級而製造，故比較上較容易控制粒徑，可獲得粒徑為數 μm ~數十 μm 左右之氮化鋁粉末，但構成此一粉末之粒子係為具有尖角形狀之非球狀體。因此，由上述方法獲得之氮化鋁粉末，難以於樹脂中高填充。

此處，為獲得球狀且具有期望之粒徑的氮化鋁粉末，檢討各種方法。

例如，專利文獻 1 中揭示，藉由將氧化鋁粉末、碳粉末之混合物於惰性氛圍中鍛燒以產生碳化鋁而使其成長為粒狀，接著，藉著於含氮之非氧化性氛圍下鍛燒，獲得平均粒子徑為 $3\mu\text{m}$ 以上的，具有帶有圓弧形狀之氮化鋁粉末的方法。然則，以此一方法獲得的氮化鋁粉末之形狀，帶有圓弧但為橢球形，故真球度低，

關於對樹脂之填充性仍有改善的餘地。

此外，專利文獻 2 揭示之製造方法，將球狀之氧化鋁於碳的存在下藉由氮氣或氨氣來還原氮化，之後，藉著將表面氧化，製造平均粒子徑為 $50\mu\text{m}$ 以下、真球度為 0.8 以上的優良耐水性之球狀氮化鋁粉末。然則，上述製造方法，為使最終製品之氮化鋁粉末的形狀維持為做為原料之氧化鋁其球狀，必須使用與目的之粒徑同等的、大粒子徑之氧化鋁。關於此一大粒徑之氧化鋁的還原氮化，為提高其轉化率必須有長時間的反應，此一結果，使獲得的氮化鋁粉末之氧濃度變高，且粒子表面之凹凸增加，無法獲得粒子表面平滑之氮化鋁粉末，對樹脂等的填充性降低令人擔憂。

另一方面，專利文獻 3 揭示之製造方法，以氧化鋁粉末、碳粉末、及鹼土族金屬類化合物或稀土族元素化合物之混合粉末為起始原料，於含氮之非氧化性氛圍中鍛燒以製作氮化鋁粉末。此一方法，利用鹼土族金屬類化合物或稀土族化合物促進反應之作用，於 1500°C 以下之低溫產生氮化鋁。然則，以上述方法獲得之氮化鋁粉末，具體而言，粒子徑為 $1\mu\text{m}$ 左右，無法獲得粒子徑為數 μm 之等級的氮化鋁粉末。此外，作為比較例，雖展示粒子徑為 $3\mu\text{m}$ 之氮化鋁粉末，仍難以獲得粒子形成為球狀但具有十分平滑之表面的氮化鋁粒子。

進一步，專利文獻 4，揭示有將不定形之氮化鋁粉末，在以鹼土族元素、稀土族元素等之化合物所構成的助熔劑中熟成(熱處理)藉以使其球狀化後，將助熔劑熔化以獲得分離之結晶質氮化鋁粉體的方法。依此一製造方法，雖能夠獲得可達成高流動性與高填充率之氮化鋁粒子，但於熱處理時等過程中，該氮化鋁粉末中易混入氧等之雜質，具有無法將此一雜質濃度控制為低濃度之問題。

[習知技術文獻]

[專利文獻]

專利文獻 1：日本特開平 3-23206 號公報

專利文獻 2：日本特開平 2005-162555 號公報

專利文獻 3：日本特開平 5-221618 號公報

專利文獻 4：日本特開 2002-179413 號公報

【發明內容】

[本發明所欲解決的問題]

因此，本發明之目的係為，提供一種由粒徑為數 μm ~數十 μm 左右之球狀氮化鋁粒子構成、其表面極為平滑、且顯著降低氧等之雜質濃度，藉而具高熱傳導性及優良填充性之球狀氮化鋁粉末及其製造方法。

[解決問題之技術手段]

本案發明人，為解決上述課題施行深刻研究之結果，使用將粒子徑小的氧化鋁或水合氧化鋁、碳粉末、以及可與氧化鋁共熔之特定共熔劑三者以特定比例混合的混合粉末，於特定溫度下還原氮化，藉以成功獲得具有自數 μm 至數十 μm 之粒徑，由表面平滑、具有高真球度、且氧等之雜質濃度相當低之球狀氮化鋁粒子構成的氮化鋁粉末，以至於完成本發明。

亦即，本發明提供一種球狀氮化鋁粉末，具有 3~30 μm 之平均粒子徑及 0.75 以上之真球度，將氧濃度抑制為 1 重量%以下，而使該平均粒子徑為 $d(\mu\text{m})$ 時，比表面積 $S(\text{m}^2/\text{g})$ 滿足下式(1)

$$(1.84/d) \leq S \leq (1.84/d + 0.5) \quad (1)$$

式中， d 為該平均粒子徑。

此外，本發明提供一種方法，以作為將上述球狀氮化鋁粉末再現性良好地製造之方法：

準備平均粒徑 2 μm 以下之氧化鋁或水合氧化鋁；由在 1200~1800 $^{\circ}\text{C}$ 可與氧化鋁共熔之鹼土金屬的氧化物、碳酸化合物或鹵化物所構成之共熔劑；以及碳粉末，

將 100 質量份之該氧化鋁或水合氧化鋁、0.5 質量份~50 質量份之該共熔劑、以及使每該氧化鋁或水合氧化鋁之重量比($\text{C}/\text{Al}_2\text{O}_3$) 為 0.38~0.44 量的該碳粉末三者混合，

藉由將該混合物於含氮氛圍下，以 1620~1800 $^{\circ}\text{C}$ 之溫度保持 2 小時以上，使該氧化鋁或水合氧化鋁還原氮化。

另，本發明中，平均粒子徑係指，以雷射繞射/散射法測定之粒度分布其累積體積為 50% 時之粒子徑。

此外，該氧濃度係指，存在於氮化鋁粉末之總氧量的比例。此一氧，包含固溶於氮化鋁之氧、氮化鋁粒子表面之氧化膜所含之氧、原料的氧化鋁或水合氧化鋁未經氮化而殘留於氮化鋁粉末中之氧、吸附於氮化鋁粉末之表面的水所含之氧，更包含共熔劑殘留時，該共熔劑所含之氧。

此一氧濃度，可由後述之實施例所示之方法加以測定。

進一步，該真球度為：以粒子之短徑/粒子之長徑所求出的值，越接近 1 則越接近真球。

[本發明之效果]

本發明之球狀氮化鋁粉末，粒徑為具有數 μm ~ 數十 μm 左右之粒徑，由具有高真球度，此外，表面平滑，更顯著降低氧等雜質之濃度的粒子所構成。例如，比表面積滿足該式(1)，係表示粒子表面平滑。

亦即，藉由高真球度與表面平滑性，可實現對樹脂等之基質中的高填充率。此外，本發明之球狀氮化鋁粒子，被氮化直至內部，且因氧等之雜質濃度極低，故其自體之熱傳導率高，可對被填充之樹脂等的基質，賦予高熱傳導性。

因此，本發明之球狀氮化鋁粉末，在作為樹脂、潤滑脂、黏接劑、塗料等之材料的填料上 useful，藉由使用此一填料，提供具有高熱傳導性之散熱材料。

此外，上述之球狀氮化鋁粉末，係使用平均粒徑 $2\mu\text{m}$ 以下之氧化鋁或水合氧化鋁(以下、單以 Al 源稱之)；於 $1200\sim 1800^\circ\text{C}$ 可與氧化鋁共熔的鹼土族金屬類之氧化物、碳酸化合物或鹵化物所構成之共熔劑；以及碳粉末：將其等以特定之量比混合，將此一混合物，以特定條件還原氮化處理，藉以再現性良好地製造。

藉上述製造方法，作為獲得本發明之球狀氮化鋁粉末的作用機構，本案發明人如以下推定。

亦即，本發明之方法中，因使用特定之具有微細粒徑之 Al 源

及可與氧化鋁共熔之共熔劑，於 1620~1800°C 之溫度下還原氮化時，先形成氧化鋁溶入之液相。此外，因對氧化鋁源以一定比例使用碳，故可調整溶入此一液相之氧化鋁的量，藉以形成具有期望之粒子徑的凝聚物，同時亦進行還原氮化。進一步，因係將還原氮化反應以特定溫度條件(1620~1800°C)施行，共熔劑成分被緩緩去除(並非一口氣地去除)，此一結果，可獲得粒子之表面狀態維持平滑，降低氧等之雜質量的氮化鋁粒子。

【實施方式】

[實施本發明之最佳形態]

<球狀氮化鋁粉末之構造>

本發明之球狀氮化鋁粉末為，具有數 μm 以上之比較上較大的粒子徑而粒子表面平滑之球狀體，且具有氧濃度低等特徵(參考圖 1)。

此一球狀氮化鋁粉末之平均粒子徑 $d(\mu\text{m})$ 為 3~30 μm ，宜為 3.5~20 μm ，更宜為 4~10 μm 。習知之位於此一範圍的粒子徑中，具有後述之特性的球狀氮化鋁粉末係由本發明初次提供。

本發明之球狀氮化鋁粉末其極為重要之特徵係為：使平均粒子徑為 $d(\mu\text{m})$ 時，比表面積 $S(\text{m}^2/\text{g})$ 位於下式(1)之範圍內。

$$(1.84/d) \leq S \leq (1.84/d + 0.5) \quad (1)$$

上式，顯示比表面積 S 對氮化鋁粉末之平均粒子徑 d 的値之範圍，此一 S 之値相較於依該平均粒子徑 d 求出之理論比表面積的値越小，表示其表面越為平滑。亦即，比表面積 S 在滿足上述條件式(1)之範圍內的粒子，其表面平滑，由此一粒子所構成的本發明之氮化鋁粉末，對樹脂之填充性極為優良。

此外，本發明之球狀氮化鋁粉末中，氧濃度被抑制為 1 重量% 以下，特別為 0.9 重量% 以下，更為 0.8 重量% 以下。此一氧濃度之抑制，係藉後述之特定共熔劑的使用來達成，本發明之球狀氮化鋁粉末，藉由此一氧濃度之抑制而發揮高熱傳導率，在將此一粉末填充於樹脂之情況，可獲得熱傳導性高之改善效果。

本發明之球狀氮化鋁粉末，如上所述將其所含之氧的總濃度抑制為一定值以下，而固溶氧濃度亦與此一總氧濃度一同被抑制為低值。

固溶氧濃度之程度，可使用 X 光繞射裝置，藉由將 Si 作為外部標準物質使用而測定之氮化鋁結晶粒子其 C 軸之晶格常數判斷。本發明之球狀氮化鋁粉末的 AlN 結晶粒子其 C 軸之晶格常數顯示為 4.9800 以上，特別為 4.9802 以上，更為 4.9804 以上之值，藉此，了解其為對氮化鋁粒子之氧固溶少的球狀氮化鋁粉末。

進一步，本發明之球狀氮化鋁粉末的真球度具有 0.75 以上，特別具有 0.80 以上，更具有 0.85 以上之高值，接近真球。

通常，以氧化鋁等為原料，將其氮化以獲得氮化鋁時，隨著氮化鋁轉化率的上升而產生與其他粒子結合或變形，有真球度降低之傾向，但本發明之球狀氮化鋁粉末之特徵為，即便於轉化率 100% 之情況，仍具有高真球度。

此外，本發明之球狀氮化鋁粉末，宜將陽離子雜質的含有量抑制為 0.3 重量% 以下，特別為 0.2 重量% 以下。

<球狀氮化鋁粉末之製造>

本發明之球狀氮化鋁粉末，使用 Al 源、共熔劑、及碳粉末，將其等以特定之量比混合，將此一混合物以特定條件還原氮化處理，並因應必要進一步施行脫碳處理，藉以再現性良好地製造。

1、Al 源：

製造本發明之球狀氮化鋁粉末時，使用氧化鋁或水合氧化鋁作為 Al 源。

此一 Al 源為，可為擁有 α 、 γ 、 θ 、 δ 、 η 、 κ 、 χ 等之結晶構造之氧化鋁，或一水軟鋁石、一水硬鋁石、三水鋁石、 α -三水鋁石、及六方水鋁石等藉加熱而脫水轉移，最終全部或一部轉移為 α -氧化鋁之水合氧化鋁；亦可將其等於單獨或混合相異種類者之狀態下使用。本發明中，特別宜使用反應活性高、容易控制之 α -氧化鋁、 γ -氧化鋁、一水軟鋁石作為 Al 源。

此外，上述 Al 源，平均粒徑必須為 $2\mu\text{m}$ 以下。亦即，使用平

均粒徑為較 $2\mu\text{m}$ 更大之粒子的情況，共熔劑之融解變得不充分，其結果，不僅獲得之氮化鋁粉末的真球度變小，且還原氮化之進行亦變得緩慢，變得難以獲得本發明之球狀氮化鋁粉末。

2、碳粉末：

本發明所使用之碳粉末，係作為還原劑作用，可使用碳黑、石墨粉末。作為碳黑，宜使用爐黑、槽法碳黑及乙炔黑。

使用之碳粉末的 BET 比表面積，宜為 $0.01\sim 500\text{m}^2/\text{g}$ 。

3、共熔劑：

本發明所使用之共熔劑為，由鹼土族金屬類之氧化物、碳酸化合物或鹵化物所構成，於 $1200\sim 1800^\circ\text{C}$ 、特別於 $1300\sim 1750^\circ\text{C}$ 可與氧化鋁共熔者。

作為共熔劑，使用可與氧化鋁共熔之溫度未滿 1200°C 的化合物之情況，作為 Al 源使用之氧化鋁粒子彼此容易凝聚，難以獲得本發明之球狀氮化鋁粉末。此外，使用上述溫度超過 1800°C 之化合物的情況，難以球狀化而難以獲得本發明之球狀氮化鋁粉末。吾人推定，此係為後述之實施還原氮化之溫度中，未產生液相之緣故。

作為上述鹼土族金屬類之例，可列舉鈣、鋇、鋇、鎂等。此外，作為鹵化物，以氟化物為代表。上述共熔劑，可使用單獨之化合物，亦可組合使用複數種化合物。

此外，作為上述共熔劑，亦可使用還原氮化中該例示之，產生鹼土族金屬類其氧化物、碳酸化合物或鹵化物的化合物。例如，可列舉鹼土族金屬類之碳酸鹽、硝酸鹽、醋酸鹽、氫氧化物等。

本發明中，共熔劑之粒子徑雖無特別限制，但平均粒子徑特別宜為 $0.01\mu\text{m}\sim 100\mu\text{m}$ ，更宜為 $0.1\mu\text{m}\sim 30\mu\text{m}$ 。

4、原料混合：

本發明中，上述之 Al 源、碳粉末及共熔劑，以既定之量比混合並供予還原氮化處理。混合方法，雖只要使此等原料均一則無特別限制，但通常宜以攪拌機、混合機、球磨機混合。

本發明中，Al 源與碳粉末之混合比必須為，使碳粉末對上述

氧化鋁粉末之重量比(C/Al_2O_3)為 0.38~0.44，宜為 0.39~0.43，更宜為 0.40~0.42 之範圍。

若此一混合比超過 0.44，則作為 Al 源使用之氧化鋁等變為以鬆散狀態存在，在鍛燒時妨礙氮化鋁之粒子成長，獲得之球狀氮化鋁粉末的平均粒子徑變得無法達成作為目的之範圍(3 μ m 以上)。

此外， C/Al_2O_3 比未滿 0.38 之情況，氧化鋁等之凝聚激烈，具有在反應後獲得之氮化鋁粉末含有多數粗粒之問題。

Al 源與共熔劑之混合比為，Al 源每 100 質量份，使共熔劑為 0.5~50 質量份，宜為 1 質量份~25 質量份，更宜為 2 質量份~10 質量份即可。共熔劑之使用量較上述範圍更少之情況，氮化鋁粒子之球狀化變得困難，此外，氮化鋁結晶粒子的 C 軸之晶格常數變小(固溶氧濃度變多)。吾人推定，此係為還原氮化之時，未產生足夠量之液相的緣故。

此外，即便共熔劑之使用量較該範圍更多，仍無法獲得更佳之球狀化效果，相反地，該共熔劑於氮化鋁粉末中成為雜質殘留，致使填充其之散熱材料的熱傳導率變低。進一步，鍛燒時，氧化鋁與共熔劑一同飛散，使產率變差。

5、還原氮化處理：

以如同上述之比例混合的 Al 源、碳粉末、與共熔劑之混合物，供予還原氮化處理。

此一還原氮化處理，藉由將上述混合物於含氮氛圍下(例如氮氣流通下)，以 1620~1800 $^{\circ}$ C，宜以 1650 $^{\circ}$ C~1720 $^{\circ}$ C 之溫度，保持 2~50 小時，更宜保持 10~20 小時而實施。

亦即，將平均粒徑為 2 μ m 以下的 Al 源(氧化鋁或水合氧化鋁)之微細粒子，與共熔劑一同地和作為還原劑之碳粉末共存之條件下，於上述溫度範圍保持以鍛燒，藉以進行 Al 源之還原氮化。

鍛燒溫度未滿 1620 $^{\circ}$ C，則 AlN 粒子表面的平滑化無法順利進展，比表面積變大，對樹脂之高填充化變得困難。另一方面，若鍛燒溫度超過 1800 $^{\circ}$ C 則共熔劑在短時間飛散，產生熱傳導率低之氮氧化物(AlON)，獲得之 AlN 粒子的氧濃度變高而 AlN 粒子彼此

變得容易凝聚，結果，變得無法獲得本發明之球狀氮化鋁粉末。此外，氧變得容易固溶於 AlN 粒子，使 AlN 粒子自體之熱傳導性變低。此一固溶於 AlN 粒子之氧的量，可由前述之 AlN 結晶粒子其 C 軸之晶格常數加以推定。

此外，上述還原氮化之時間未滿 2 小時，則使氮化反應未結束而 AlN 粒子之球狀化無法進展，此外，AlN 結晶粒子的 C 軸之晶格常數變小。另一方面，鍛燒時間超過 50 小時，則 AlN 粒子彼此凝聚，有容易產生粗粒的傾向。

6、脫碳處理：

本發明中，因以上述反應獲得之氮化鋁粉末含有剩餘的碳粉末，宜施行脫碳處理。

此一脫碳處理，係將碳氧化而去除，使用氧化氣體加以施行。作為此一氧化氣體，為空氣、氧等只要可去除碳之氣體即無任何限制可予以採用，但考慮經濟性與獲得之氮化鋁的氧濃度，宜使用空氣。此外，處理溫度一般可為 500~900°C，考慮脫碳之效率與氮化鋁表面之過度氧化，宜為 600~750°C。

若氧化溫度過高，則氮化鋁粉末之表面被過度氧化，有難以獲得具有作為目的之氧濃度的球狀氮化鋁粉末之傾向，故宜選擇適當的氧化溫度與時間。

<氮化鋁粉末之用途>

本發明之球狀氮化鋁粉末，有氮化鋁之性質所產生之用途，特別是可作為填充於散熱片、散熱脂、散熱黏接劑、塗料、熱傳導性樹脂等之散熱材料的填料而被廣泛使用。

此處作為散熱材料之基質，可列舉環氧樹脂、酚樹脂等之熱硬化性樹脂；聚乙烯、聚丙烯、聚醯胺、聚碳酸酯、聚醯亞胺、聚苯硫等之熱可塑性樹脂；或矽酮橡膠、EPR、SBR 等之橡膠類；以及矽酮油。

此等之中，作為散熱材料之基質，宜為例如環氧系樹脂、矽酮系樹脂；作為高柔軟性散熱構件，宜為附加反應型液狀矽酮橡膠。

為提高散熱材料之熱傳導性，可於樹脂、橡膠或油等之基質的每 100 重量份，添加填料 150~1000 重量份。此一散熱材料，除了本發明之球狀氮化鋁粉末以外，亦可填充氮化鋁粉末、破碎狀氧化鋁、球狀氧化鋁、氮化硼、氧化鋅、碳化矽、石墨等之一種或數種類之填料，亦可因應散熱材料之特性與用途，選擇本發明之球狀氮化鋁粉末與其以外的填料之形狀、粒徑。例如，欲獲得高熱傳導之散熱材料的情況，亦可與以其他方法獲得之數種類的 AlN 粉末組合使用。具體而言，為實現對於樹脂的高填充化，可將本發明之球狀氮化鋁粉末與所謂的『燒結顆粒』組合使用，該『燒結顆粒』即為將粒徑自 0.1 μm 至 100 μm 左右之以還原氮化法或直接氮化法獲得之氮化鋁粉末，藉由噴霧乾燥方式獲得之氮化鋁顆粒加以燒結而得。此外，謀求對樹脂之填料高填充化的情形，宜採用將本發明之球狀氮化鋁粉末與數種類的平均粒子徑為 10~100 μm 之球狀氧化鋁併用的方法。欲對散熱材料之熱傳導性賦予非等向性之情況，亦可將本發明之球狀氮化鋁粉末與數種類的平均粒子徑為 1~50 μm 之氮化硼組合使用。此等之填料，可使用以例如矽烷偶合劑、磷酸或磷酸鹽等施行表面處理者。

此外，散熱材料的球狀氮化鋁粉末與其以外之填料的混合比，可於 1:99~99:1 之範圍適宜調整。此外，散熱材料，亦可進一步添加可塑劑、硫化劑、硬化促進劑、離型劑等之添加劑。

上述之樹脂組成物，可藉由以攪拌機或混合機混合而製造；此外，散熱材料，可藉由以加壓成形法、擠製成形法、刮刀法使樹脂組成物成形，將其加熱硬化而製造。

【實施例】

以下，將本發明更具體地加以說明，但本發明並不限定為此等之實施例。實施例及比較例之各種物性，以下述之方法測定。

(1) 比表面積

比表面積，以 BET 一點法施行測定。

(2) 平均粒子徑

平均粒子徑(D₅₀)，將試樣以勻和器分散於焦磷酸鈉水溶液

中，以雷射繞射粒度分布裝置(日機裝(股)公司製 MICROTRAC HRA)測定。

(3)真球度

自電子顯微鏡之照片圖像，選出任意粒子 100 個，使用標尺測定粒子圖像之長徑(DL)與短徑(DS)，使其比值(DS/DL)之平均值為真球度。

(4)產率

氮化鋁粉末之產率為，將獲得之氮化鋁的莫耳數其 2 倍之值，除以作為起始原料之氧化鋁的莫耳數值之值的%表示。

(5)陽離子雜質含有量

氮化鋁粉末之陽離子雜質含有量(金屬元素濃度)為，將氮化鋁粉末鹼熔融後，以酸中和，使用 ICP 發光分析計(ICP-S-7510：島津製作所製)定量。

(6)氧濃度

氮化鋁粉末之氧濃度為，使用氧·氮分析裝置(商品名：EMGA-620W，堀場製作所製)，使用作為惰性氣體之氮氣將氧定量。

(7)C 軸之晶格常數

氮化鋁粉末的 C 軸之晶格常數為，使用高輸出 X 光裝置(商品名：RINT-1400，Rigaku(股)公司製)，使用 Si 作為外部標準物質而測定。

(8)矽酮橡膠薄片之熱傳導率

將熱傳導性矽酮橡膠組成物成形為 10cm×6cm、厚度 3mm 之大小，於 150°C 之熱風循環式烘箱中加熱 1 小時以硬化，使用熱傳導率計(京都電子工業製 QTM-500)測定熱傳導率。此外為防止自偵測部之漏電，隔著厚度 10 μ m 之聚二氟亞乙烯薄膜測定。

<實施例 1>

使用平均粒子徑 1.2 μ m、比表面積 10.7m²/g 之 α 氧化鋁作為 Al 源；碳黑(比表面積 125m²/g)作為碳粉末；平均粒子徑 8.0 μ m 之碳酸鈣作為共熔劑。

將上述之 α 氧化鋁與碳黑以 $C/Al_2O_3=0.42$ 的比例混合，更將平均粒子徑 $8.0\mu m$ 之碳酸鈣，於 α 氧化鋁每 100 質量份添加 8.9 質量份而混合。

將所獲得之混合物，於氮氣氛圍下，以鍛燒溫度 $1700^\circ C$ 、鍛燒時間 15 時間之條件鍛燒，施行 α 氧化鋁的還原氮化。

其後，於空氣氛圍中以 $700^\circ C$ 12 小時施行氧化處理，獲得氮化鋁粉末。將所獲得之粉末以前述方法，測定比表面積、平均粒子徑、真球度、產率、陽離子雜質含有量、氧濃度、及 C 軸之晶格常數。結果顯示於表 1。

其次，將

獲得之氮化鋁粉末 900 質量份、

熱硫化型橡膠 100 質量份、

(Momentive Performance Materials Japan 合同會社製 TSE201)

離型劑 0.5 質量份，

以加壓揉合機揉合。將所得之揉合物冷卻後使用輥子與 0.5 質量份之交聯劑混合後，以 $180^\circ C$ 進行 15 分鐘加壓推壓，獲得長 10cm、寬 6cm、厚度 3mm 之薄片。

對所獲得之薄片，以前述之方法測定熱傳導率。結果一併顯示於表 1。

<實施例 2>

除了將 Al 源之 α 氧化鋁變更為一水軟鋁石以外，與實施例 1 相同地製造球狀氮化鋁粉末。

於表 1 顯示所獲得之球狀氮化鋁粉末的比表面積、平均粒子徑、真球度、產率、陽離子雜質含有量、氧濃度、及 C 軸之晶格常數。

更使用獲得之氮化鋁粉末，與實施例 1 相同地製作薄片，測定熱傳導率。結果顯示於表 1。

<實施例 3>

除了使鍛燒溫度為 $1650^\circ C$ 以外，與實施例 1 相同地製造球狀氮化鋁粉末。

於表 1 顯示所獲得之球狀氮化鋁粉末的比表面積、平均粒子徑、真球度、產率、陽離子雜質含有量、氧濃度、及 C 軸之晶格常數。

更使用獲得之氮化鋁粉末，與實施例 1 相同地製作薄片，測定熱傳導率。結果顯示於表 1。

<實施例 4>

除了將作為共熔劑之碳酸鈣的使用量變更為 5.4 質量份以外，與實施例 1 相同地製造球狀氮化鋁粉末。

於表 1 顯示所獲得之球狀氮化鋁粉末的比表面積、平均粒子徑、真球度、產率、陽離子雜質含有量、氧濃度、及 C 軸之晶格常數。

更使用獲得之氮化鋁粉末，與實施例 1 相同地製作薄片，測定熱傳導率。結果顯示於表 1。

<實施例 5>

除了將作為共熔劑之碳酸鈣的使用量變更為 17.9 質量份以外，與實施例 1 相同地製造球狀氮化鋁粉末。

於表 1 顯示所獲得之球狀氮化鋁粉末的比表面積、平均粒子徑、真球度、產率、陽離子雜質含有量、氧濃度、及 C 軸之晶格常數。

更使用獲得之氮化鋁粉末，與實施例 1 相同地製作薄片，測定熱傳導率。結果顯示於表 1。

<實施例 6>

除了將 α 氧化鋁與碳黑之混合比(C/Al₂O₃)變更為 0.39 以外，與實施例 1 相同地製造球狀氮化鋁粉末。

於表 1 顯示所獲得之球狀氮化鋁粉末的比表面積、平均粒子徑、真球度、產率、陽離子雜質含有量、氧濃度、及 C 軸之晶格常數。

更使用獲得之氮化鋁粉末，與實施例 1 相同地製作薄片，測定熱傳導率。結果顯示於表 1。

<實施例 7>

除了將作為共熔劑之碳酸鈣的使用量變更為 44.6 質量份以外，與實施例 1 相同地製造球狀氮化鋁粉末。

於表 1 顯示所獲得之球狀氮化鋁粉末的比表面積、平均粒子徑、真球度、產率、陽離子雜質含有量、氧濃度、及 C 軸之晶格常數。

更使用獲得之氮化鋁粉末，與實施例 1 相同地製作薄片，測定熱傳導率。結果顯示於表 1。

【表 1】

		實施例 1	實施例 2	實施例 3	實施例 4	實施例 5	實施例 6	實施例 7
製造 條件	Al 源	α 氧化鋁	一水軟 鋁石	α 氧化鋁	α 氧化鋁	α 氧化鋁	α 氧化鋁	α 氧化鋁
	共熔劑	CaCO ₃	CaCO ₃	CaCO ₃	CaCO ₃	CaCO ₃	CaCO ₃	CaCO ₃
	共熔劑量 (氧化鋁粉末 每 100 質量份)	8.9	8.9	8.9	5.4	17.9	8.9	44.6
	碳粉末量 (C/Al ₂ O ₃)	0.42	0.42	0.42	0.42	0.42	0.39	0.42
	鍛燒溫度(°C)	1700	1700	1650	1700	1700	1700	1700
	鍛燒時間 (hour)	15	15	15	15	15	15	15
	結果	比表面積 (m ² /g)	0.60	0.50	0.66	0.70	0.40	0.66
平均粒子徑 (μ m)		4.9	4.1	4.4	4.5	5.6	7.6	6.5
真球度(-)		0.82	0.91	0.79	0.79	0.88	0.79	0.92
產率(%)		86.5	61.4	88.8	92.1	79.6	86.2	46.3
Ca 含有量 (ppm)		290	240	330	190	540	310	770
Fe 含有量 (ppm)		3	3	5	3	5	3	3
S 含有量(ppm)		21	16	41	38	6	20	5
氧濃度(wt%)		0.58	0.49	0.64	0.81	0.33	0.55	0.31
C 軸之 晶格常數(Å)		4.9807	4.9802	4.9805	4.9804	4.9810	4.9806	4.9811
薄片熱傳導率 (W/mK)		8.3	7.5	7.2	7.1	8.9	8.5	7.4

<比較例 1>

除了將 α 氧化鋁與碳黑之混合比(C/Al₂O₃)變更為 0.36 以外，與實施例 1 相同地製造球狀氮化鋁粉末。

於表 2 顯示所獲得之球狀氮化鋁粉末的比表面積、平均粒子

徑、真球度、產率、陽離子雜質含有量、氧濃度、及 C 軸之晶格常數。

更使用獲得之氮化鋁粉末，與實施例 1 相同地欲以加壓揉合機揉合熱硫化型橡膠及離型劑以製作薄片，但黏度高而無法製作薄片。

<比較例 2>

除了將 α 氧化鋁與碳黑之混合比(C/Al₂O₃)變更為 0.48 以外，與實施例 1 相同地製造球狀氮化鋁粉末。

於表 2 顯示所獲得之球狀氮化鋁粉末的比表面積、平均粒子徑、真球度、產率、陽離子雜質含有量、氧濃度、及 C 軸之晶格常數。

進一步使用獲得之氮化鋁粉末，與實施例 1 相同地欲以加壓揉合機揉合熱硫化型橡膠及離型劑以製作薄片，但與比較例 1 相同，黏度高而無法製作薄片。

<比較例 3>

除了將作為共熔劑之碳酸鈣的使用量變更為 0.3 質量份以外，與實施例 1 相同地製造球狀氮化鋁粉末。

於表 2 顯示所獲得之球狀氮化鋁粉末的比表面積、平均粒子徑、真球度、產率、陽離子雜質含有量、氧濃度、及 C 軸之晶格常數。

進一步使用獲得之氮化鋁粉末，與實施例 1 相同地欲以加壓揉合機揉合熱硫化型橡膠及離型劑以製作薄片，但此一情況亦黏度高而無法製作薄片。

<比較例 4>

除了使鍛燒溫度為 1880°C 以外，與實施例 1 相同地製造球狀氮化鋁粉末。

於表 2 顯示所獲得之球狀氮化鋁粉末的比表面積、平均粒子徑、真球度、產率、陽離子雜質含有量、氧濃度、及 C 軸之晶格常數。

更使用獲得之氮化鋁粉末，與實施例 1 相同地製作薄片，測

定熱傳導率。結果顯示於表 2。

<比較例 5>

除了使鍛燒溫度為 1550°C 以外，與實施例 1 相同地製造球狀氮化鋁粉末。

於表 2 顯示所獲得之球狀氮化鋁粉末的比表面積、平均粒子徑、真球度、產率、陽離子雜質含有量、氧濃度、及 C 軸之晶格常數。

更使用獲得之氮化鋁粉末，與實施例 1 相同地欲以加壓揉合機揉合熱硫化型橡膠及離型劑以製作薄片，但此一情況亦黏度高而無法製作薄片。

<比較例 6>

除了將鍛燒時間縮短為 1 小時以外，與實施例 1 相同地製造球狀氮化鋁粉末。

於表 2 顯示所獲得之球狀氮化鋁粉末的比表面積、平均粒子徑、真球度、產率、陽離子雜質含有量、氧濃度、及 C 軸之晶格常數。

更使用獲得之氮化鋁粉末，與實施例 1 相同地製作薄片，測定熱傳導率。結果顯示於表 2。

<比較例 7>

除了將作為共熔劑之碳酸鈣的使用量變更為 80 質量份以外，與實施例 1 相同地製造球狀氮化鋁粉末。

於表 2 顯示所獲得之球狀氮化鋁粉末的比表面積、平均粒子徑、真球度、產率、陽離子雜質含有量、氧濃度、及 C 軸之晶格常數。

進一步使用獲得之氮化鋁粉末，與實施例 1 相同地製作薄片，測定熱傳導率。結果顯示於表 2。

【表 2】

		比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6	比較例 7
製造 條件	Al 源	α 氧化鋁	α 氧化鋁	α 氧化鋁	α 氧化鋁	α 氧化鋁	α 氧化鋁	α 氧化鋁
	共熔劑	CaCO ₃	CaCO ₃	CaCO ₃	CaCO ₃	CaCO ₃	CaCO ₃	CaCO ₃
	共熔劑量 (氧化鋁粉末 每 100 質量份)	8.9	8.9	0.3	8.9	8.9	8.9	80
	碳粉末量 (C/Al ₂ O ₃)	0.36	0.48	0.42	0.42	0.42	0.42	0.42
	鍛燒溫度(°C)	1700	1700	1700	1880	1550	1700	1700
	鍛燒時間 (hour)	15	15	15	15	15	1	15
結果	比表面積 (m ² /g)	1.11	1.00	1.60	0.49	1.53	1.50	0.33
	平均粒子徑 (μ m)	8.2	2.7	1.9	4.7	2.9	3.2	7.4
	真球度(-)	0.65	0.89	0.72	0.88	0.67	0.63	0.89
	產率(%)	88.2	83.2	97.5	86.1	87.6	91	33.2
	Ca 含有量 (ppm)	280	360	180	170	460	2030	57200
	Fe 含有量 (ppm)	3	3	3	3	9	3	4
	S 含有量(ppm)	21	26	55	14	47	57	18
	氧濃度(wt%)	0.72	0.98	1.11	1.13	1.30	1.20	2.61
	C 軸之 晶格常數(Å)	4.9805	4.9804	4.9797	4.9796	4.9795	4.9782	4.9815
薄片熱傳導率 (W/mK)	-	-	-	5.4	-	4.3	4.2	

【產業上利用性】

以本發明獲得之球狀氮化鋁粉末，具有填料所適合之形狀、粒徑，可對樹脂、橡膠、矽酮油等之基質高填充，可獲得熱傳導率高之散熱薄片、散熱潤滑脂、散熱黏接劑等。

【圖式簡單說明】

圖 1 係電子顯微鏡照片，顯示在表示代表性製造方法的實施例 1 中所獲得的本發明之球狀氮化鋁粉末其粒子構造。

【主要元件符號說明】

無。

七、申請專利範圍：

1、一種球狀氮化鋁粉末之製造方法，其特徵為：

準備平均粒徑 $2\mu\text{m}$ 以下之氧化鋁或水合氧化鋁；由在 $1200\sim 1800^\circ\text{C}$ 可與氧化鋁共熔之鹼土金屬的氧化物、碳酸化合物或鹵化物所構成之共熔劑；以及碳粉末；

將 100 質量份之該氧化鋁或水合氧化鋁、0.5 質量份 \sim 50 質量份之該共熔劑、以及使每該氧化鋁或水合氧化鋁之重量比($\text{C}/\text{Al}_2\text{O}_3$) 為 0.38 \sim 0.44 量的該碳粉末三者混合；

藉由將該混合物於含氮氛圍下，在氧化鋁溶入之液相的狀態下，以 $1620\sim 1800^\circ\text{C}$ 之溫度保持 10 \sim 20 小時，使該氧化鋁或水合氧化鋁還原氮化，藉以獲得球狀氮化鋁粉末；

該球狀氮化鋁粉末具有 $3\sim 30\mu\text{m}$ 之平均粒子徑及 0.75 以上之真球度。

八、圖式：

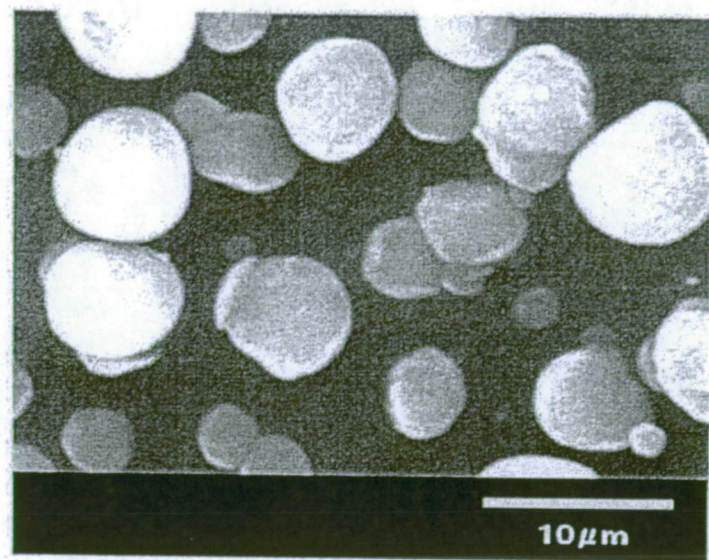


圖 1