(19)国家知识产权局

(12)发明专利申请

(10)申请公布号 CN 118103330 A
(43)申请公布日 2024.05.28

(21)申请号 202280069132.2
(22)申请日 2022.10.14
(30)优先权数据
2021-169606 2021.10.15 JP
(85)PCT国际申请进入国家阶段日
2024.04.12
(86)PCT国际申请的申请数据
PCT/JP2022/038352 2022.10.14
(87)PCT国际申请的公布数据
WO2023/063413 JA 2023.04.20
(71)申请人 达泰豪化学工业株式会社
地址 日本
(72)发明人 斋藤彰范
(74)专利代理机构 北京林达刘知识产权代理事务所(普通合伙) 11277
专利代理师 刘新宇 闫俊萍
(51)Int.Cl.
C01F 5/06(2006.01)
C08L 101/00(2006.01)
C08K 3/26(2006.01)

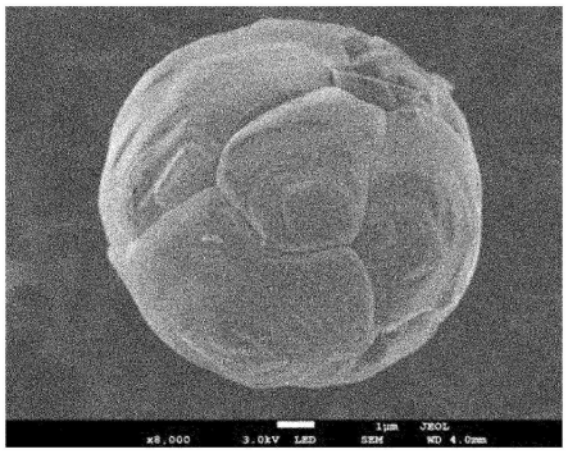
权利要求书1页 说明书10页 附图1页

(54)发明名称

球状氧化镁、其制造方法、树脂填料及树脂组合物

(57)摘要

本发明的目的为提供球形度高、耐湿性及在树脂中的填充性优异的球状氧化镁及其制造方法。本发明为一种球状氧化镁,其中,所述球状氧化镁的属于元素周期表第3周期～第4周期的元素(其中,不包括属于第2族及第18族的元素)和钇的总含量为500～12000ppm,利用激光衍射散射式粒度分布测定的体积基准的累积50%粒径(D_{50})为1～200μm的范围,由SEM照片读取的球形度为1.00～1.20。



CN 118103330 A

1.一种球状氧化镁,其特征在于,所述球状氧化镁的属于元素周期表第3周期～第4周期的元素(其中,不包括属于第2族及第18族的元素)和钇的总含量为500～12000ppm,利用激光衍射散射式粒度分布测定的体积基准的累积50％粒径(D_{50})为1～200μm的范围,由SEM照片读取的球形度为1.00～1.20。

2.一种球状氧化镁,其特征在于,所述球状氧化镁的属于元素周期表第3周期～第4周期的元素(其中,不包括属于第2族及第18族的元素)的总含量为500～12000ppm,利用激光衍射散射式粒度分布测定的体积基准的累积50％粒径(D_{50})为1～200μm的范围,由SEM照片读取的球形度为1.00～1.20。

3.根据权利要求1或2所述的球状氧化镁,其中,所述属于元素周期表第3周期～第4周期的元素为选自由钠、铝、硅、磷、氯、钾及钛组成的组中的至少1种以上。

4.根据权利要求1～3中任一项所述的球状氧化镁,其中,硼的含量小于10ppm。

5.根据权利要求1～4中任一项所述的球状氧化镁,其中,锂的含量小于15ppm。

6.根据权利要求1～5中任一项所述的球状氧化镁,其中,钙的含量小于700ppm。

7.根据权利要求1～6中任一项所述的球状氧化镁,其中,累积50％粒径(D_{50})为5～100μm的范围。

8.根据权利要求1～7中任一项所述的球状氧化镁,其中,BET比表面积为0.01～1.00m^2/g。

9.一种树脂填料,其含有权利要求1～8中任一项所述的球状氧化镁。

10.一种树脂组合物,其含有权利要求9所述的树脂填料。

11.一种球状氧化镁的制造方法,其特征在于,其包括以下工序:

1)使镁盐水溶液与碳酸盐水溶液反应后,使生成的碳酸镁聚集,从而得到球状碳酸镁浆料的工序;

2)对所述球状碳酸镁浆料进行过滤、水洗及干燥,从而得到球状碳酸镁颗粒的工序;以及,

3)对所述球状碳酸镁颗粒进行焙烧,从而得到球状氧化镁的工序,

在所述1)～3)的至少1个以上的工序中,以焙烧后的球状氧化镁中的属于元素周期表第3周期～第4周期的元素(其中,不包括属于第2族及第18族的元素)和钇的总含量为500～12000ppm的方式调整属于元素周期表第3周期～第4周期的元素(其中,不包括属于第2族及第18族的元素)和钇的量。

12.一种球状氧化镁的制造方法,其特征在于,其包括以下工序:

1)使镁盐水溶液与碳酸盐水溶液反应后,使生成的碳酸镁聚集,从而得到球状碳酸镁浆料的工序;

2)对所述球状碳酸镁浆料进行过滤、水洗及干燥,从而得到球状碳酸镁颗粒的工序;以及,

3)对所述球状碳酸镁颗粒进行焙烧,从而得到球状氧化镁的工序,

在所述1)～3)的至少1个以上的工序中,以焙烧后的球状氧化镁中的属于元素周期表第3周期～第4周期的元素(其中,不包括属于第2族及第18族的元素)的总含量为500～12000ppm的方式调整属于元素周期表第3周期～第4周期的元素(其中,不包括属于第2族及第18族的元素)的量。

球状氧化镁、其制造方法、树脂填料及树脂组合物

技术领域

[0001] 本发明涉及球形度高并且耐湿性优异的球状氧化镁及其制造方法、以及含有所述球状氧化镁的树脂填料及含有其的树脂组合物。

背景技术

[0002] 氧化镁的电绝缘性、导热性、耐热性等优异,作为耐火物原料、加热器用绝缘材料、研磨材料、橡胶的硫化促进剂、涂料/油墨用颜料等工业用材料被用于各种用途。另外,出于对树脂赋予耐热性等特性的目的也被用作树脂填料。专利文献1中出于对用于食品等包装用途的树脂薄膜赋予阻气性的目的使用了氧化镁。专利文献2中作为树脂中添加的白色颜料使用了氧化镁。专利文献3中出于改善树脂的耐光性的目的使用了氧化镁。专利文献4中出于提高环氧树脂的导热性的目的使用了氧化镁。但是,配混于树脂中时,氧化镁的吸湿性高,会发生与大气中的水分水合从而产生由填料的体积膨胀导致的裂纹等问题,因此需要即使长期使用也不会发生上述问题的耐湿性优异的氧化镁。另外,将氧化镁用作树脂填料时,为了得到优异的性能,还需要在树脂组合物中的高填充性。

[0003] 将氧化镁用作树脂填料时,需要填充性和耐湿性。专利文献5中提出了一种通过添加锂化合物而得到的表面平滑且致密的球状氧化镁。专利文献6中提出了一种通过将硼和铁的含量调整在一定范围而得到的表面平滑并且耐湿性及填充性优异的球状氧化镁。专利文献7中提出了一种通过将硼和锂的含量调整在一定范围而得到的耐湿性及填充于树脂时的树脂组合物的流动性优异的球状氧化镁。

[0004] 现有技术文献

[0005] 专利文献

[0006] 专利文献1:日本特开2015-131494号公报

[0007] 专利文献2:日本特开2015-101614号公报

[0008] 专利文献3:日本特开2009-227725号公报

[0009] 专利文献4:日本特开2017-186578号公报

[0010] 专利文献5:日本特开2016-088838号公报

[0011] 专利文献6:日本特开2018-131378号公报

[0012] 专利文献7:国际公开第2020/203710号

发明内容

[0013] 发明要解决的问题

[0014] 但是,利用上述方法得到的球状氧化镁虽然耐湿性、在树脂中的填充性得到改善,但需要控制硼含量、锂含量。另外,由于包含较多的硼或锂,因此存在如下的技术问题:氧化镁的特性(绝缘性、耐热性、导热性)下降,并且这些元素容易向树脂中溶出,从而给电子设备等最终产品的性能带来不良影响。并且,氧化镁中包含锂时,会给填充于树脂时的树脂组合物的流动性带来不良影响,因此希望锂的含量少。因而,本发明的技术问题在于提供一种

即使不含有一定量的硼或锂,球形度也高、耐湿性及在树脂中的填充性也优异的球状氧化镁及其制造方法。

[0015] 用于解决问题的方案

[0016] 为了解决上述技术问题,本发明人等反复进行各种研究,结果发现:通过调整属于元素周期表第3周期~第4周期的元素(其中,不包括属于第2族及第18族的元素)的含量,即使不含有一定量的硼或锂,也可得到球形度高、耐湿性及在树脂中的填充性优异的球状氧化镁。另外发现:除了属于元素周期表第3周期~第4周期的元素(其中,不包括属于第2族及第18族的元素)以外,调整钇的含量对获得球形度高、耐湿性及在树脂中的填充性优异的球状氧化镁也是有效的。

[0017] 即,本发明为一种球状氧化镁,其中,所述球状氧化镁的属于元素周期表第3周期~第4周期的元素(其中,不包括属于第2族及第18族的元素)和钇的总含量为500~12000ppm,利用激光衍射散射式粒度分布测定的体积基准的累积50%粒径(D_{50})为1~200μm的范围,由SEM照片读取的球形度为1.00~1.20。

[0018] 另外,本发明为一种球状氧化镁,其中,所述球状氧化镁的属于元素周期表第3周期~第4周期的元素(其中,不包括属于第2族及第18族的元素)的总含量为500~12000ppm,利用激光衍射散射式粒度分布测定的体积基准的累积50%粒径(D_{50})为1~200μm的范围,由SEM照片读取的球形度为1.00~1.20。

[0019] 另外,本发明为含有上述球状氧化镁的树脂填料。

[0020] 另外,本发明为含有上述树脂填料的树脂组合物。

[0021] 另外,本发明为一种球状氧化镁的制造方法,其特征在于,其包括以下工序:

[0022] 1)使镁盐水溶液与碳酸盐水溶液反应后,使生成的碳酸镁聚集,从而得到球状碳酸镁浆料的工序;

[0023] 2)对所述球状碳酸镁浆料进行过滤、水洗及干燥,从而得到球状碳酸镁颗粒的工序;以及,

[0024] 3)对所述球状碳酸镁颗粒进行焙烧,从而得到球状氧化镁的工序,

[0025] 在所述1)~3)的至少1个以上的工序中,以焙烧后的球状氧化镁中的属于元素周期表第3周期~第4周期的元素(其中,不包括属于第2族及第18族的元素)和钇的总含量为500~12000ppm的方式调整属于元素周期表第3周期~第4周期的元素(其中,不包括属于第2族及第18族的元素)和钇的量。

[0026] 另外,本发明为一种球状氧化镁的制造方法,其特征在于,其包括以下工序:

[0027] 1)使镁盐水溶液与碳酸盐水溶液反应后,使生成的碳酸镁聚集,从而得到球状碳酸镁浆料的工序;

[0028] 2)对所述球状碳酸镁浆料进行过滤、水洗及干燥,从而得到球状碳酸镁颗粒的工序;以及,

[0029] 3)对所述球状碳酸镁颗粒进行焙烧,从而得到球状氧化镁的工序,

[0030] 在所述1)~3)的至少1个以上的工序中,以焙烧后的球状氧化镁中的属于元素周期表第3周期~第4周期的元素(其中,不包括属于第2族及第18族的元素)的总含量为500~12000ppm的方式调整属于元素周期表第3周期~第4周期的元素(其中,不包括属于第2族及第18族的元素)的量。

[0031] 发明的效果

[0032] 根据本发明,能够提供球形度高、耐湿性及在树脂中的填充性优异的球状氧化镁及其制造方法。

附图说明

[0033] 图1示出实施例1的球状氧化镁的SEM照片。

具体实施方式

[0034] 本发明的球状氧化镁中,属于元素周期表第3周期~第4周期的元素(其中,不包括属于第2族及第18族的元素)和钇的总含量为500~12000ppm,利用激光衍射散射式粒度分布测定的体积基准的累积50%粒径(D_{50})为1~200μm的范围,由SEM照片读取的球形度为1.00~1.20。

[0035] 另外,本发明的球状氧化镁中,属于元素周期表第3周期~第4周期的元素(其中,不包括属于第2族及第18族的元素)的总含量为500~12000ppm,利用激光衍射散射式粒度分布测定的体积基准的累积50%粒径(D_{50})为1~200μm的范围,由SEM照片读取的球形度为1.00~1.20。需要说明的是,说明书中ppm只要没有特别说明就是指质量ppm。

[0036] 本发明中,通过将属于元素周期表第3周期~第4周期的元素(其中,不包括属于第2族及第18族的元素)和钇的总含量控制在500~12000ppm,可得到利用激光衍射散射式粒度分布测定的体积基准的累积50%粒径(D_{50})为1~200μm的范围、由SEM照片读取的球形度为1.00~1.20的球形度高并且耐湿性优异的球状氧化镁。本发明的球状氧化镁由于如此高的球形度从而在树脂中的填充性优异。

[0037] 另外,本发明中,例如通过将属于元素周期表第3周期~第4周期的元素(其中,不包括属于第2族及第18族的元素)的总含量控制在500~12000ppm,可得到利用激光衍射散射式粒度分布测定的体积基准的累积50%粒径(D_{50})为1~200μm的范围、由SEM照片读取的球形度为1.00~1.20的球形度高并且耐湿性优异的球状氧化镁。本发明的球状氧化镁由于如此高的球形度从而在树脂中的填充性优异。

[0038] 本发明中,属于元素周期表第3周期~第4周期的元素(其中,不包括属于第2族及第18族的元素)具体是指钠、铝、硅、磷、硫、氯、钾、钪、钛、钒、铬、锰、铁、钴、镍、铜、锌、镓、锗、砷、硒、溴。例如,优选为选自由钠、铝、硅、磷、氯、钾及钛组成的组中的至少1种以上,更优选为选自由铝、硅、磷及钛组成的组中的至少1种以上。另外,也优选为选自由铝、硅及钛组成的组中的至少1种以上。本发明中,通过调整属于元素周期表第3周期~第4周期的元素的含量,可得到耐湿性优异、球形度高、表面平滑的球状氧化镁。

[0039] 本发明中,例如,属于元素周期表第3周期~第4周期的元素(其中,不包括属于第2族及第18族的元素)的总含量为500~12000ppm,优选为500~10000ppm,更优选为500~8000ppm。总含量小于500ppm时,无法得到耐湿性优异、球形度高、表面平滑的球状氧化镁。总含量大于12000ppm时,容易发生颗粒的过度生长、颗粒间的粘着,因此无法得到球形度高的球状氧化镁。

[0040] 本发明的球状氧化镁中,例如将钠、铝、硅、磷、硫、氯、钾、钪、钛、钒、铬、锰、铁、钴、镍、铜、锌、镓、锗、砷、硒、溴和钇的总含量调整为规定量(例如500~12000ppm,优选500~

10000ppm,更优选500～8000ppm)。由此,可得到耐湿性优异、球形度高、表面平滑的球状氧化镁。另外,本发明的球状氧化镁中,也优选将铝、硅、磷、锰、钛和钇的总含量调整为上述规定量。另外,例如,本发明的球状氧化镁中,可以将铝、硅、磷、锰和钛的总含量调整为上述规定量,或者也可以将铝、硅及钛的总含量调整为上述规定量。

[0041] 本发明的球状氧化镁例如可含有规定量(例如500～12000ppm,优选500～10000ppm,更优选500～8000ppm)的选自由钠、铝、硅、磷、硫、氯、钾、钪、钛、钒、铬、锰、铁、钴、镍、铜、锌、镓、锗、砷、硒、溴及钇组成的组中的至少1种以上,由此可得到耐湿性优异、球形度高、表面平滑的球状氧化镁。另外,本发明的球状氧化镁也优选含有上述规定量的选自由铝、硅、磷、锰、钛及钇组成的组中的至少1种以上。另外,例如本发明的球状氧化镁可以含有上述规定量的例如选自由铝、硅、磷、锰及钛组成的组中的至少1种以上,或者也可以含有上述规定量的选自由铝、硅及钛组成的组中的至少1种以上。

[0042] 本发明中,即使不含有一定量的硼,也能得到耐湿性优异、球形度高、表面平滑的球状氧化镁,因此可极大地降低硼的含量。因此,本发明中,硼的含量例如可以小于10ppm,优选小于9ppm,更优选小于8ppm。通过降低硼的含量,能够防止氧化镁的特性下降。另外,可以降低硼在树脂中溶出,因此用于电子设备等用途时能够防止电子电路的错误。

[0043] 本发明中,即使不含有一定量的锂,也能得到耐湿性优异、球形度高、表面平滑的球状氧化镁,因此可极大地降低锂的含量。因此,本发明中,锂的含量例如可以小于15ppm,优选小于10ppm,更优选小于5ppm。通过降低锂的含量,能够防止氧化镁的绝缘性下降。另外,能够降低锂在树脂中溶出,因此能够防止最终产品的性能下降。

[0044] 本发明中,钙的含量例如可设为小于700ppm,优选小于600ppm,更优选小于500ppm。钙的含量为700ppm以上时,耐湿性容易下降,另外,存在难以获得球形度高的球状氧化镁的倾向。

[0045] 本发明中,利用激光衍射散射式粒度分布测定的体积基准的累积50%粒径(D_{50})为1～200μm的范围,优选设为5～100μm,更优选设为10～50μm。另外,例如10～150μm也是优选的范围。

[0046] 本发明中,影响在树脂中的填充性的由SEM照片读取的球形度为1.00～1.20,优选为1.00～1.15,更优选为1.00～1.10。需要说明的是,本发明中,针对使用扫描型电子显微镜(SEM)而拍摄的电子显微镜照片的100个颗粒,测量穿过颗粒中心的长径和短径的长度,求出长径/短径之比,将其平均值作为球形度。

[0047] 本发明中,BET比表面积例如为0.01～1.00m^2/g,优选为0.05～0.80m^2/g,更优选为0.10～0.60m^2/g。

[0048] 本发明的球状氧化镁的制造方法没有特别限制,例如可由如下方式制造。

[0049] 1)使镁盐水溶液与碳酸盐水溶液反应后,使生成的碳酸镁聚集,从而得到球状碳酸镁浆料;

[0050] 2)对所述球状碳酸镁浆料进行过滤、水洗及干燥,从而得到球状碳酸镁颗粒;

[0051] 3)通过在大气中对所述球状碳酸镁颗粒进行焙烧,从而得到目标球状氧化镁。

[0052] 此时,在最终焙烧前,通过添加、混合等以最终焙烧后的球状氧化镁中的属于元素周期表第3周期～第4周期的元素(其中,不包括属于第2族及第18族的元素)和钇的总含量为500～12000ppm的方式调整属于元素周期表第3周期～第4周期的元素(其中,不包括属于

第2族及第18族的元素)的量。

[0053] 对于属于元素周期表第3周期～第4周期的元素(其中,不包括属于第2族及第18族的元素)和钇的总含量的调整,具体而言,a)在镁盐水溶液和/或碳酸盐水溶液中添加包含上述元素的化合物;b)在得到的球状碳酸镁浆料中添加包含上述元素的化合物;c)在得到的球状碳酸镁颗粒中混合包含上述元素的化合物等来调整最终得到的球状氧化镁中的含量。

[0054] 另外,例如可由如下方式制造。

[0055] 1)使镁盐水溶液与碳酸盐水溶液反应后,使生成的碳酸镁聚集,从而得到球状碳酸镁浆料;

[0056] 2)对所述球状碳酸镁浆料进行过滤、水洗及干燥,从而得到球状碳酸镁颗粒;

[0057] 3)通过在大气中对所述球状碳酸镁颗粒进行焙烧,从而得到目标球状氧化镁。

[0058] 此时,在最终焙烧前,通过添加、混合等以最终焙烧后的球状氧化镁中的属于元素周期表第3周期～第4周期的元素(其中,不包括属于第2族及第18族的元素)的总含量为500～12000ppm的方式调整属于元素周期表第3周期～第4周期的元素(其中,不包括属于第2族及第18族的元素)的量。

[0059] 对于属于元素周期表第3周期～第4周期的元素(其中,不包括属于第2族及第18族的元素)的总含量的调整,具体而言,a)在镁盐水溶液和/或碳酸盐水溶液中添加包含上述元素的化合物;b)在得到的球状碳酸镁浆料中添加包含上述元素的化合物;c)在得到的球状碳酸镁颗粒中混合包含上述元素的化合物等来调整最终得到的球状氧化镁中的含量。

[0060] 此处,对于上述添加、混合等中使用的化合物,只要是包含属于元素周期表第3周期～第4周期的元素(其中,不包括属于第2族及第18族的元素)的化合物,就可以没有特别限定地使用。另外,对于钇,也只要是包含钇的化合物就可以没有特别限定地使用。

[0061] 作为铝源,只要是包含铝的化合物就没有特别限定,例如可以使用氢氧化铝、氧化铝、碳酸铝、氯化铝、硝酸铝、乙酸铝、硫酸铝等。

[0062] 作为硅源,只要是包含硅的化合物就没有特别限定,例如可以使用氧化硅、硅酸盐等。作为氧化硅,例如可列举出结晶性二氧化硅、非晶质气相二氧化硅、胶体二氧化硅等。作为硅酸盐,例如可列举出硅酸钠、硅酸镁、硅酸钾、硅酸钙等。

[0063] 作为磷源,只要是包含磷的化合物就没有特别限定,例如可以使用磷酸、磷酸盐等。作为磷酸盐,例如可列举出磷酸镁、磷酸钠、磷酸钾、磷酸铵等。

[0064] 作为氯源,只要是包含氯的化合物就没有特别限定,例如可列举出氯化钠、氯化镁、氯化钾、氯化钙等。

[0065] 作为溴源,只要是包含溴的化合物就没有特别限定,例如可列举出溴化钠、溴化镁、溴化钾、溴化钙等。

[0066] 作为钠源,只要是包含钠的化合物就没有特别限定,例如可列举出氯化钠、碳酸钠、磷酸钠、氢氧化钠、硝酸钠等。

[0067] 作为钾源,只要是包含钾的化合物就没有特别限定,例如可列举出氯化钾、碳酸钾、磷酸钾、氢氧化钾、硝酸钾等。

[0068] 作为钛源,只要是包含钛的化合物就没有特别限定,例如可列举出氧化钛(锐钛矿型、金红石型)、氯化钛、氢氧化钛、溴化钛、氟化钛、钛酸镁等。

[0069] 作为锰源,只要是包含锰的化合物就没有特别限定,例如可列举出二氧化锰、氢氧化锰、碳酸锰、氯化锰及硝酸锰等。

[0070] 作为钇源,只要是包含钇的化合物就没有特别限定,例如可列举出氧化钇、氯化钇及硝酸钇等。

[0071] 另外,例如也优选将最终焙烧后的球状氧化镁的硼含量控制为小于10ppm,将锂含量控制为小于15ppm,将钙含量控制为小于700ppm。对于降低硼含量、锂含量及钙含量的方法,没有特别限定,例如可以使用:反复进行前体碳酸镁滤饼的再浆料化和过滤后水洗的再浆化清洗;实施镁盐水溶液的基于吸附剂的预处理;焙烧时的升温曲线的调整等已知的工艺,或者也可以将它们组合使用。另外,通过选择不含这些元素的原材料,适当管理制造工序中的含有可能性,也能将上述各元素的含量控制得较低。

[0072] 作为上述镁盐水溶液中的镁盐,没有特别限定,例如可以从氯化镁、硝酸镁、硫酸镁和乙酸镁以及它们的组合中选择并使用。

[0073] 作为上述碳酸盐水溶液中的碳酸盐,没有特别限定,例如可以从碳酸钠、碳酸钾和碳酸铵以及它们的组合中选择并使用。

[0074] 镁盐水溶液的镁盐浓度优选为1~30质量%,碳酸盐水溶液的碳酸盐浓度优选为1~30质量%。镁盐水溶液与碳酸盐水溶液的反应例如可以在溶液中的$[Mg^{2+}]$:$[CO_3^{2-}]$的离子浓度比为1.2:1~1:1.5的条件下进行。

[0075] 本发明的球状氧化镁的制造方法中,首先,使镁盐水溶液与碳酸盐水溶液反应后,使生成的碳酸镁聚集,从而得到球状碳酸镁浆料。此处,对于镁盐水溶液与碳酸盐水溶液反应而产生的碳酸镁,例如可以通过加热至60~100℃的温度并保持0.1~5小时,来使其适当聚集成利用激光衍射散射式粒度分布测定的体积基准的累积50%粒径(D_{50})为1~200μm、球形度为1.00~1.30的球状。

[0076] 对于聚集成球状的碳酸镁浆料,例如可以通过该技术领域中的常规方法,进行过滤、水洗、干燥,从而制成球状碳酸镁颗粒。

[0077] 上述制造方法中得到的碳酸镁颗粒可以为无水碳酸镁、正构碳酸镁、碱式碳酸镁中的任意者,优选为碱式碳酸镁。

[0078] 对于球状碳酸镁颗粒的焙烧条件,只要是碳酸镁热解为氧化镁的范围就没有特别限定,例如,优选将温度设为1000℃~1800℃,更优选设为1100℃~1700℃,特别优选设为1200℃~1600℃。焙烧时间取决于焙烧温度,但例如优选为0.5~10小时。焙烧温度低于1000℃时,无法充分烧结,超过1800℃时,颗粒彼此烧结而形成粗大的聚集体,故调整为上述范围。

[0079] 本发明的球状氧化镁特征在于即使不进行表面处理也具有充分的耐湿性,但出于进一步改善耐湿性的目的也可以使用公知的方法实施表面处理。对本发明的球状氧化镁实施表面处理时,使用的表面处理剂没有特别限定,例如可以使用胶体二氧化硅、硅烷系偶联剂、二氧化钛溶胶、钛酸酯系偶联剂、磷化合物、氧化铝溶胶、铝酸盐系偶联剂、锆系偶联剂等。

[0080] 作为硅烷系偶联剂,例如可列举出乙烯基三氯硅烷、乙烯基三烷氧基硅烷、缩水甘油氧基丙基三烷氧基硅烷、甲基丙烯酰氧基丙基甲基二烷氧基硅烷等。

[0081] 作为钛酸酯系偶联剂,例如可列举出钛酸四异丙酯、钛酸四正丁酯、钛酸四辛酯、

钛酸四硬脂基酯、异丙基三异硬脂酰基钛酸酯、四辛基双(二(十三烷基)亚磷酸酰氧基)钛酸酯、双(二辛基焦磷酸酯)氧乙酸酯钛酸酯等。

[0082] 作为磷化合物,例如只要是能与氧化镁反应而形成磷酸镁系化合物的化合物就没有特别限定,例如可列举出磷酸、磷酸盐、酸性磷酸酯。它们可以单独使用,也可以组合使用2种以上。作为酸性磷酸酯,例如可列举出酸式磷酸异丙酯、酸式磷酸2-乙基己酯、酸式磷酸油酯、酸式磷酸甲酯、酸式磷酸乙酯、酸式磷酸丙酯、酸式磷酸丁酯、酸式磷酸月桂酯、酸式磷酸硬脂酯等。

[0083] 作为铝酸盐系偶联剂,例如可列举出异丙醇铝、二异丙醇单仲丁氧基铝、仲丁醇铝、乙酰乙酸乙酯二异丙醇铝、三(乙酰乙酸乙酯)铝、乙酰乙酸烷基酯二异丙醇铝等。

[0084] 作为锆系偶联剂,例如可列举出正丙基锆酸酯、正丁基锆酸酯等。

[0085] 本发明的球状氧化镁的球形度高、耐湿性优异、在树脂中的填充性也优异,因此可适合地作为填充材料而配混至树脂中,作为树脂填料是有用的。例如可适合地用作导热性填料、耐热性填料、阻气性填料、耐光性填料等,其中,作为导热性填料是优异的。

[0086] 作为本发明中可以使用的树脂,例如可列举出热固性树脂或热塑性树脂。作为热固性树脂,没有特别限定,例如可列举出酚醛树脂、尿素树脂、三聚氰胺树脂、醇酸树脂、聚酯树脂、环氧树脂、邻苯二甲酸二烯丙酯树脂、聚氨酯树脂或有机硅树脂。作为热塑性树脂,没有特别限定,例如可列举出聚酰胺树脂、聚缩醛树脂、聚碳酸酯树脂、聚对苯二甲酸丁二醇酯树脂、聚烯烃树脂、聚砜树脂、聚酰胺酰亚胺树脂、聚醚酰亚胺树脂、聚芳酯树脂、聚苯硫醚树脂、聚醚醚酮树脂、氟树脂或液晶聚合物。

[0087] 本发明的树脂组合物中的球状氧化镁的配混量根据树脂组合物所需的特性适当确定即可,没有特别限定。但是,作为一例,相对于树脂100质量份,以0.1～100质量份的范围使用球状氧化镁即可。

[0088] 包含本发明的球状氧化镁的树脂组合物可根据其树脂的特性而用于各种领域。

[0089] 实施例

[0090] 通过下述实施例来详细说明本发明,但这些实施例在任何意义上均不限定本发明。

[0091] ＜测定方法·评价方法＞

[0092] (1)元素含量的测定方法

[0093] 元素含量的测定利用ICP发射光谱分析来进行。将测定试样加入酸并使其完全溶解,然后使用ICP测定装置(PS3520 VDD、Hitachi High-Technologies公司制)来测定各元素的含量。需要说明的是,下述表1及2中,当各元素的含量低于检测极限时,作为痕量表示为＜1ppm。

[0094] (2)BET比表面积的测定方法

[0095] 使用比表面积测定装置(Macsorb,Mountech Co.Ltd.制),通过使用氮气的气体吸附法(BET法)来测定BET比表面积。

[0096] (3)体积基准的累积50％粒径(D_{50})

[0097] 精确称量测定试样0.1×10^{-3}kg,用40mL的甲醇分散,使用激光衍射散射式粒度分布测定装置(MT3300日机装株式会社制)进行测定。

[0098] (4)由SEM照片读取的球形度和表面的平滑性

[0099] 使用扫描型电子显微镜(SEM)(JSM6510LA日本电子株式会社制)。针对所拍摄的电子显微镜照片的100个颗粒,测量穿过颗粒中心的长径和短径的长度,求出长径/短径之比,将其平均值作为球形度。另外,针对用扫描型电子显微镜(SEM)拍摄的电子显微镜照片的球状氧化镁的表面状态,将球状氧化镁表面几乎不存在微细颗粒而表面平滑的评价为○,将球状氧化镁表面存在多个微细颗粒但表面平滑的、或者表面几乎不存在微细颗粒但表面凹凸而不平滑的评价为△,将球状氧化镁表面存在多个微细颗粒、表面凹凸而不平滑的评价为×。

[0100] (5)基于恒温恒湿试验的耐湿性评价

[0101] 球状氧化镁的耐湿性通过基于恒温恒湿试验的重量增加率进行评价。

[0102] 恒温恒湿机使用ADVANTEC东洋株式会社制的THN040FA。

[0103] 求出使用恒温恒湿机将10g球状氧化镁在85℃、85%RH的环境下暴露168小时后的重量增加率。

[0104] <实施例1>

[0105] 将硝酸镁六水合物(关东化学株式会社制特级)溶解于离子交换水,制备约20质量%的硝酸镁水溶液。将碳酸钾(关东化学株式会社制特级)溶解于离子交换水,制备约15质量%的碳酸钾水溶液。以[Mg^{2+}]:[CO_3^{2-}]的离子浓度比为1:1的方式使硝酸镁水溶液与碳酸钾水溶液反应,合成碳酸镁。反应后,将碳酸镁浆料加热至90℃,保持1小时,由此准备球状碳酸镁的浆料。以最终得到的球状氧化镁中的硅含量为2500ppm的方式在其中添加二氧化硅(关东化学株式会社制特级)后,进行过滤、水洗、干燥,由此得到球状碳酸镁颗粒。用电炉将得到的球状碳酸镁颗粒于1500℃焙烧1小时,得到球状氧化镁颗粒。需要说明的是,焙烧前的球状碳酸镁颗粒的粒径(D_{50})为20.5μm,球形度为1.12。

[0106] <实施例2>

[0107] 以最终得到的球状氧化镁中的硅含量为5000ppm的方式添加二氧化硅(关东化学株式会社制特级),除此以外,利用与实施例1同样的方法得到球状氧化镁。需要说明的是,焙烧前的球状碳酸镁颗粒的粒径(D_{50})为20.3μm,球形度为1.12。

[0108] <实施例3>

[0109] 以最终得到的球状氧化镁中的铝含量为2500ppm的方式添加氧化铝(关东化学株式会社制鹿特级)来代替二氧化硅的添加,除此以外,利用与实施例1同样的方法得到球状氧化镁。需要说明的是,焙烧前的球状碳酸镁颗粒的粒径(D_{50})为20.2μm,球形度为1.13。

[0110] <实施例4>

[0111] 以最终得到的球状氧化镁中的钛含量为7500ppm的方式添加氧化钛(关东化学株式会社制锐钛矿型鹿1级)来代替二氧化硅的添加,除此以外,利用与实施例1同样的方法得到球状氧化镁。需要说明的是,焙烧前的球状碳酸镁颗粒的粒径(D_{50})为20.5μm,球形度为1.13。

[0112] <比较例1>

[0113] 不进行二氧化硅的添加,除此以外,利用与实施例1同样的方法得到球状氧化镁。需要说明的是,焙烧前的球状碳酸镁颗粒的粒径(D_{50})为19.8μm,球形度为1.12。

[0114] <结果>

[0115] 对实施例1~4及比较例1的球状氧化镁进行上述测定及评价。将结果示于下表1。

需要说明的是,除表1所示以外的属于元素周期表第3周期～第4周期的各元素的含量均为10ppm以下。另外,钇元素的含量为10ppm以下。

[0116] [表1]

[0117]

	实施例1	实施例2	实施例3	实施例4	比较例1
铝含量(ppm)	3	4	2,523	10	4
硅含量(ppm)	2,509	5,080	10	28	11
钛含量(ppm)	＜1	＜1	＜1	7,435	＜1
硼含量(ppm)	＜1	＜1	2	＜1	＜1
锂含量(ppm)	＜1	＜1	＜1	＜1	＜1
钙含量(ppm)	21	23	34	18	25
D_{50}(μm)	14.7	14.1	13.9	15.2	12.5
BET比表面积(m^2/g)	0.31	0.30	0.58	0.20	22.20
耐湿性(重量增加%)	2.14	1.72	6.86	1.02	40.90
球形度	1.04	1.05	1.10	1.05	1.29
表面状态	○	○	○	○	×

[0118] 由表1可知,实施例1～4的球状氧化镁的球形度高,耐湿性也优异。另一方面,比较例的球状氧化镁的球形度、耐湿性均差。

[0119] 进而,如下述那样得到实施例5～9的球状氧化镁,与实施例1～4及比较例1同样地进行测定和评价。

[0120] 〈实施例5〉

[0121] 以最终得到的球状氧化镁中的硅含量为700ppm的方式添加二氧化硅(关东化学株式会社制特级)并使焙烧温度为1600℃,除此以外,利用与实施例1同样的方法得到球状氧化镁。

[0122] 〈实施例6〉

[0123] 以最终得到的球状氧化镁中的硅含量为11500ppm的方式添加二氧化硅(关东化学株式会社制特级)并使焙烧温度为1600℃,除此以外,利用与实施例1同样的方法得到球状氧化镁。

[0124] 〈实施例7〉

[0125] 以最终得到的球状氧化镁中的磷含量为1200ppm的方式添加三聚磷酸钠(关东化学株式会社制鹿1级)来代替二氧化硅的添加并使焙烧温度为1600℃,除此以外,利用与实施例1同样的方法得到球状氧化镁。

[0126] 〈实施例8〉

[0127] 以最终得到的球状氧化镁中的锰含量为9000ppm的方式添加氯化锰四水合物(关东化学株式会社制特级)来代替二氧化硅的添加并使焙烧温度为1600℃,除此以外,利用与实施例1同样的方法得到球状氧化镁。

[0128] 〈实施例9〉

[0129] 以最终得到的球状氧化镁中的钇含量为4500ppm的方式添加硝酸钇六水合物(关东化学株式会社制高纯度试剂)来代替二氧化硅的添加并使焙烧温度为1600℃,除此以外,利用与实施例1同样的方法得到球状氧化镁。

[0130] <结果>

[0131] 对于实施例5～9的球状氧化镁,与实施例1～4及比较例1同样地进行测定和评价。将结果示于下表2。需要说明的是,除表2所示以外的属于元素周期表第3周期～第4周期的各元素的含量均为10ppm以下。

[0132] [表2]

[0133]

	实施例5	实施例6	实施例7	实施例8	实施例9
铝含量(ppm)	136	79	8	21	11
硅含量(ppm)	649	11618	23	27	32
钛含量(ppm)	<1	<1	<1	<1	<1
硼含量(ppm)	<1	<1	<1	<1	<1
锂含量(ppm)	<1	<1	<1	<1	<1
钙含量(ppm)	9	21	23	11	258
磷含量(ppm)	<1	<1	1139	<1	<1
锰含量(ppm)	<1	<1	<1	8457	<1
钇含量(ppm)	<1	<1	<1	<1	4524
D_{50}(μm)	18.8	19.9	24.6	20.4	16.8
BET比表面积(m^2/g)	0.12	0.16	0.09	0.11	0.11
耐湿性(重量增加%)	1.12	1.34	4.56	1.42	2.95
球形度	1.07	1.03	1.03	1.06	1.05
表面状态	○	○	○	○	○

[0134] 由表2可知,实施例5～9的球状氧化镁的球形度高,耐湿性也优异。

[0135] 由此可知,本发明的球状氧化镁的球形度高、耐湿性优异。因此可知,本发明的球状氧化镁作为优异的树脂填料是有用的。

[0136] 产业上的可利用性

[0137] 本发明的球状氧化镁的球形度高、耐湿性优异,因此作为优异的树脂填料是有用的。

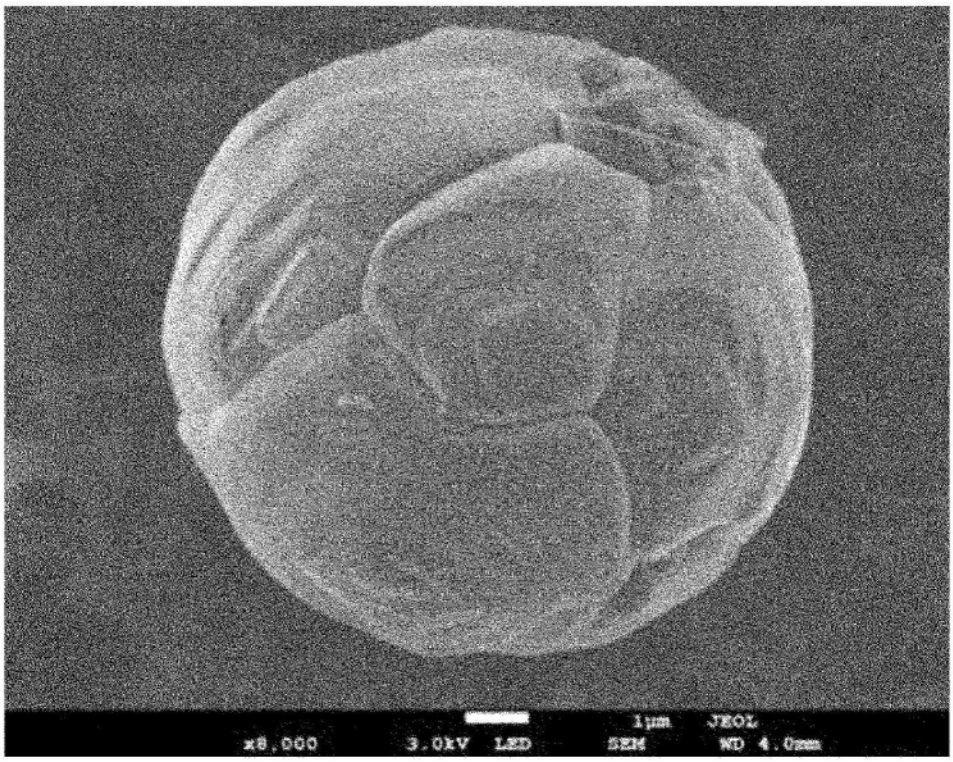


图1