



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公開本 (11)公開編號：TW 202434540 A

(43)公開日：中華民國 113 (2024) 年 09 月 01 日

(21)申請案號：112140796 (22)申請日：中華民國 112 (2023) 年 10 月 25 日
(51)Int. Cl. : C04B35/584 (2006.01) C01B21/068 (2006.01)
(30)優先權：2022/11/02 日本 2022-176363
(71)申請人：日商德山股份有限公司 (日本) TOKUYAMA CORPORATION (JP)
日本
(72)發明人：石本 竜二 ISHIMOTO, RYUJI (JP) ； 草野 大 KUSANO, DAI (JP)
(74)代理人：林志剛
申請實體審查：無 申請專利範圍項數：2 項 圖式數：0 共 16 頁

(54)名稱
氮化矽燒結體

(57)摘要
本發明的氮化矽燒結體為將選自由 Ti、Ge、Zr、Ag、Ba 及 Hf 所成群組之至少一種的元素，以 0.01~0.15 質量%的濃度以固溶的方式包含於構成燒結體的氮化矽粒子中之氮化矽燒結體。根據本發明，能夠提供一種氮化矽燒結體，其相較於在室溫的體積電阻率之在高溫的體積電阻率的降低遠小於以往的氮化矽燒結體。



【發明摘要】

【中文發明名稱】

氮化矽燒結體

【中文】

本發明的氮化矽燒結體為將選自由Ti、Ge、Zr、Ag、Ba及Hf所成群組之至少一種的元素，以0.01~0.15質量%的濃度以固溶的方式包含於構成燒結體的氮化矽粒子中之氮化矽燒結體。根據本發明，能夠提供一種氮化矽燒結體，其相較於在室溫的體積電阻率之在高溫的體積電阻率的降低遠小於以往的氮化矽燒結體。

【指定代表圖】 無
【代表圖之符號簡單說明】 無

【特徵化學式】 無

【發明說明書】

【中文發明名稱】

氮化矽燒結體

【技術領域】

【0001】本發明是有關於一種新穎的氮化矽燒結體。詳細而言，提供相對於在室溫的體積電阻率之在高溫的體積電阻率的降低為極少之氮化矽燒結體。

【先前技術】

【0002】由於氮化矽燒結體具有高熱傳導性、高絕緣性、高強度等優良特性，作為各種工業材料受到注目。上述氮化矽燒結體雖然在室溫顯示高體積電阻率，但在高溫則體積電阻率顯著地降低，因此，使用於作為使用溫度達到200℃以上的電源模組(power module)等基板的情況時，有難以維持充分的絕緣耐性之虞。

【0003】以往為了抑制在高溫的體積電阻率的降低，將形成有電路的氮化矽燒結體電路基板於氮環境中加熱，藉此提高在高溫的電絕緣性的技術已被報導(參照專利文獻1)。再者，已揭示含有預定量的Mg，或預定量的Mg及Y₂O₃的氮化矽燒結體在高溫的電絕緣性為高，推測其作用機制是由於上述元素固溶於氮化矽的結晶粒子中，或MgO溶解而覆蓋於構成燒結體的結晶粒子(參照專利文獻2)。

【0004】然而，上述任一者的氮化矽燒結體，高溫時

的體積電阻率的降低的抑制不夠充分，尚有進一步改善的空間。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

【0005】

[專利文獻1]日本特開2001-77245號公報

[專利文獻2]日本特開2001-64080號公報

【發明內容】

[發明所欲解決之課題]

【0006】 因此，本發明的目的在於提供一種氮化矽燒結體，其相對於在室溫的體積電阻率之在高溫的體積電阻率的降低遠小於以往的氮化矽燒結體。

[用以解決課題之手段]

【0007】 本發明者們為了解決上述課題不斷努力研究的結果，發現將特定的元素以特定量固溶於構成氮化矽燒結體的氮化矽結晶粒子，藉此能夠有效地抑制在高溫的體積電阻率的降低，而完成本發明。

【0008】 亦即，根據本發明，提供一種氮化矽燒結體，其特徵在於，選自由Ti、Ge、Zr、Ag、Ba及Hf所成群組之至少一種的元素以0.01~0.15質量%的濃度以固溶的方式包含於構成燒結體的氮化矽粒子。

【0009】 再者，上述氮化矽燒結體為固溶於前述氮化

矽粒子之P、Cr、Mn及Fe的元素的總計濃度調整為0.05質量%以下者，由於能夠更抑制在高溫的體積電阻率的降低而較佳。

[發明的效果]

【0010】本發明的氮化矽燒結體，即使在作為電源模組等基板的用途中實際使用上的使用溫度，也能夠高度地維持在室溫的高體積電阻率，能夠維持使用於此種用途的情況時之充分的絕緣耐性。

【實施方式】

【0011】本發明中，對象之氮化矽燒結體以80質量%以上、尤其是90質量%以上的比率含有氮化矽為適當。再者，鋁元素的總含量(質量)較佳為800ppm以下。藉此，能夠成為具有高熱傳導率之氮化矽燒結體。上述鋁元素的總含量較佳為500ppm以下、進而較佳為200ppm以下。

【0012】本發明的氮化矽燒結體的最大特徵為，於構成燒結體的氮化矽粒子中，以0.01~0.15質量%、較佳為0.03~0.12質量%的濃度以固溶的方式含有選自由Ti、Ge、Zr、Ag、Ba及Hf所成群組之至少一種的元素(以下稱為特定第一元素)。上述固溶濃度的範圍中，各特定第一元素的固溶量為0.01質量%以上、較佳為0.03質量%以上為佳。上述特定第一元素可單獨使用一種，亦可併用二種以上。併用兩種以上的特定第一元素的情況時，上述特定第一元

素的含量是指二種以上的元素的總計含量。

【0013】上述特定第一元素之中，尤其是選自Zr及Hf所成群組之至少一種的元素為佳。

【0014】本發明中，元素以固溶的方式存在於氮化矽粒子之事項的確認及其濃度的測定，在後述的實施例中具體地說明，能夠藉由下述的方法進行。

【0015】

(1)元素以固溶的方式存在於氮化矽粒子之事項的確認

「固溶」是指，例如氮化矽粒子中，氮、矽以外的元素並非是作為單體或化合物析出且存在於氮化矽粒子內部的狀態，以此種狀態存在於氮化矽粒子之事項，能夠以穿透式電子顯微鏡(TEM)觀察氮化矽粒子內部有無析出物，及經由搭載於TEM的能量分散X光光譜分析裝置(EDS)分析前述氮化矽粒子內部的元素而確認。

【0016】

(2)於氮化矽粒子中以固溶方式存在的元素的濃度的測定

於氮化矽粒子中以固溶方式存在的元素的濃度，能夠經由EDS之元素的定性及定量分析而測定。

【0017】本發明的氮化矽燒結體藉由將特定第一元素以前述特定的濃度包含於構成燒結體的氮化矽粒子中，藉此能夠顯著地抑制在高溫的體積電阻率的降低，即使在如前述電源模組用基板般的高溫的使用，也能夠維持高體積電阻率。亦即，構成燒結體的氮化矽粒子中，特定第一元素的濃度比前述範圍少的情況時，缺乏抑制氮化矽燒結體

在高溫的體積電阻率的降低的效果，難以發揮在高溫的高體積電阻率。再者，特定第一元素的濃度比前述範圍高的情況時，雖然發揮在高溫的體積電阻率的降低之抑制效果，但有產生氮化矽燒結體的熱傳導率的降低、絕緣性的降低等問題的傾向。

【0018】再者，期望前述特定第一元素均勻地分布於構成燒結體的個別的氮化矽粒子中，較佳為以前述TEM觀察的氮化矽粒子中，以個數比率為80%以上、較佳為90%以上的粒子中存在特定第一元素。

【0019】本發明的氮化矽燒結體只要滿足上述構成，其他的構成無特殊限制，作為較佳態樣列舉下述的態樣。

【0020】本發明的氮化矽燒結體中，前述特定第一元素以外的固溶元素少者為佳，其中，固溶於前述氮化矽粒子中的P、Cr、Mn及Fe的元素(以下稱為特定第二元素。)的總計濃度為0.05質量%以下，尤其是0.02質量%以下為佳。

【0021】構成本發明的氮化矽燒結體的氮化矽粒子較佳為氮化矽的結晶粒子，平均粒徑(平均長徑)無特殊限制，能夠賦予氮化矽燒結體高熱傳導性，較佳為1~5 μm 、尤其是3~5 μm 。

【0022】再者，前述氮化矽粒子的平均長寬比無特殊限制，為了賦予氮化矽燒結體高強度，較佳為1.2~2.5、尤其是約1.7~2.5。

【0023】進而，構成氮化矽燒結體的氮化矽粒子的晶

界相(grain boundary phase)，或者三重點(triple point)中亦可存在源自燒結中使用的助劑成分的化合物相。

【0024】本發明的氮化矽燒結體的形狀無特殊限制，作為前述電源模組等的基板的用途為板狀。板狀體的厚度為0.1~1mm，尤其是一般為約0.2~0.7mm。

【0025】本發明的氮化矽燒結體的製造方法無特殊限制，作為代表性的製造方法，能夠列舉一種氮化矽燒結體的製造方法，其特徵在於，包含準備固溶有特定第一元素之氮化矽粉末之步驟，及將上述氮化矽粉末進行燒成獲得燒結體之步驟。

【0026】上述製造方法的特徵為，不是將特定第一元素在氮化矽粉末的燒結時添加，而是事先使其先固溶於氮化矽粉末。亦即，燒結時，將特定第一元素添加至氮化矽粉末的情況時，此元素難以固溶於構成燒結體的氮化矽粒子，成為容易存在於晶界。因此，由此種方法所獲得的氮化矽燒結體為構成燒結體的氮化矽粒子中特定第一元素的固溶濃度不夠充分，難以維持在高溫時的高體積電阻率。

【0027】獲得固溶有前述特定第一元素的氮化矽粉末的方法無特殊限制，能夠列舉例如，經由燃燒合成法製造氮化矽粉末時，於原料的矽中添加特定第一元素的化合物，具體為氧化物、氮化物等，再進行反應的態樣，於氮化矽粉末或塊狀物添加特定第一元素的化合物後，在600~1600℃藉由加熱使其固溶，依照需要進行粉碎的態樣等。

【0028】從容易製造固溶有元素的氮化矽粉末的觀點而言，藉由上述燃燒合成法之方法為佳，此方法為使用矽粉末作為原料，在氮環境下將原料粉末的一部分強制點火，經由原料化合物的本身發熱而合成氮化矽的方法。燃燒合成法為周知的方法，例如能夠參照日本特開 2000-264608 號公報、國際公開第 2019/167879 號等。

【0029】最終獲得的氮化矽燒結體中特定第一元素的固溶濃度，能夠經由固溶於前述氮化矽粉末中的特定第一元素的濃度而調整。

【0030】另一方面，作為降低氮化矽粉末，以及延伸的最終獲得的氮化矽燒結體中前述特定第二元素的固溶濃度的方法，能夠列舉，作為燒結用原料，以盡可能地不含特定第一元素以外的元素之高純度的原料製造氮化矽粉末的態樣，氮化矽粉末的製造時使用的粉碎介質或收納容器、輸送管線等的材質，不直接接觸包含前述特定第二元素的素材的態樣等。

【0031】前述氮化矽燒結體的製造方法中，使用的氮化矽粉末的結晶型態無特殊限制，能夠將 α 型、 β 型的氮化矽粉末單獨或組合使用。

【0032】上述氮化矽粉末的平均粒徑適合使用 $0.5\sim 3\mu\text{m}$ ，尤其是 $0.7\sim 1.7\mu\text{m}$ 之物。再者，氮化矽粉末的氧量較佳為約 $0.5\sim 1.5$ 質量%。

【0033】前述氮化矽燒結體的製造方法中，燒成氮化矽粉末製造氮化矽燒結體的方法亦無特殊限定，能夠無特

殊限制地採用以往的方法。

【0034】能夠列舉例如，將包含氮化矽粉末及燒結助劑的原料混合物的成形體在氮氣、氬氣等惰性氣體的供給下，於 $0\sim 0.1\text{MPa}\cdot\text{G}$ 的壓力下，以 1200°C 以上、未滿上述壓力下氮化矽的分解溫度的溫度，燒成 $2\sim 30$ 小時的方法。

【0035】作為上述燒結助劑，能夠使用鈮、鎂、鈾等的氧化物、碳氮化物等周知的燒結助劑，其使用量相對於氮化矽粉末 100 質量份為 $5\sim 20$ 質量份、尤其是 $7\sim 10$ 質量為佳。

【0036】再者，製造成形體時，也能夠使用聚乙烯醇、聚乙烯縮丁醛、甲基纖維素、褐藻酸、聚乙二醇、羧甲基纖維素、乙基纖維酯、丙烯酸樹脂等黏結劑，其含量相對於氮化矽粉末 100 質量份，較佳為 $1\sim 30$ 質量份，因應成形方法適當地決定其比率即可。

【0037】進而，使用黏結劑進行成形時，能夠使用水、醇、烴等溶劑調配漿料，將其以刮刀法等成形方法成形為片狀等形狀，依照需要進行乾燥、脫脂，提供於燒成。

【0038】藉由本發明的氮化矽燒結體的製造方法製造基板的情況時，前述燒成後，也能夠於燒成後將表面以例如藉由氮化矽粉末等研磨粒進行噴砂而清淨化，再者，也能夠將表面研磨。

[實施例]

【0039】以下，顯示實施例以更具體地說明本發明，但本發明不受限於此。

【0040】再者，實施例及比較例中，各種測定方法由下述的方法進行。

【0041】

(1)氮化矽燒結體的固溶元素濃度

氮化矽燒結體的固溶元素濃度經由TEM-EDS測定而求取。裝置使用搭載日本電子製EDS JED-2300之日本電子製TEM JEM-2100，以TEM觀察氮化矽燒結體中任意的氮化矽粒子30個，經由EDS點分析實施元素的定性及定量分析，以30個粒子的分析值的平均值作為氮化矽燒結體的固溶元素濃度。但是，以TEM觀察的氮化矽粒子30個之中，即使確認到1個在粒子內部包含析出物的氮化矽粒子的情況時，設定為無法測定固溶元素濃度。又，TEM的加速電壓設為200kV，每1粒子的EDS測定時間設為1000秒。

【0042】

(2)氮化矽燒結體中固溶有特定第一元素的氮化矽粒子的比率

氮化矽燒結體中固溶有特定第一元素的氮化矽粒子的比率，是以相對於前述TEM觀察的氮化矽粒子30個，以前述EDS分析檢驗到至少一種的特定第一元素的氮化矽粒子的個數的比而計算。但是，以TEM觀察在粒子內部確認到析出物的氮化矽粒子作為未固溶的粒子而計數。再者，前述EDS分析中特定第一元素的檢驗下限為0.005質量%。

【 0043 】**(3)氮化矽燒結體的鋁元素的總含量**

氮化矽燒結體中的鋁元素的總含量使用電感耦合電漿發光分光分析裝置(Thermo Fisher Scientific公司製「iCAP 6500DUO」)而測定。

【 0044 】**(4)室溫、450℃的體積電阻率**

室溫(25℃)、450℃的體積電阻率的測定使用組合微量電流計及電爐而製作的評價裝置，依據JIS C2141測定體積電阻率而求取。測定是在氮氣環境，施加電壓500V進行。再者，在450℃的測定的情況時，以升溫速度20℃/min升溫至450℃後，保持15分鐘後進行測定。

【 0045 】**實施例1~22 比較例1、2**

對於將矽粉末(半導體等級、平均粒徑5 μm)80質量%、作為稀釋劑之氮化矽粉末(平均粒徑1.5 μm)20質量%的比率混合的混合粉末，以表1所示的元素的氧化物以表1所示的比率摻合獲得原料粉末。

【 0046 】將上述原料粉末填充於反應容器，形成原料粉末層。接著，將該反應容器設置於具有點火裝置與氣體供給排除設備的耐壓性的密閉式反應器內，將反應器內減壓而脫氣之後，供給氮氣，取代為氮。之後，緩慢地供給氮氣，使其上升至0.7MPa。到達預定的壓力的時間點(點火時)的原料粉末的體積密度為0.5g/cm³。之後，在反應容

器內的原料粉末的端部點火，進行燃燒合成反應，獲得由氮化矽形成的塊狀生成物。將獲得的塊狀生成物適量地投入振動研磨機進行6小時的微粉碎。再者，微粉碎機及微粉碎方法使用通常的裝置及方法，作為防止金屬污染的對策，於粉碎機的內部施加胺基甲酸酯襯裡層，粉碎介質使用以氮化矽作為主劑之球(ball)。再者，在微粉碎開始前不久添加作為粉碎助劑的乙醇1質量%進行微粉碎，獲得氮化矽粉末。

【0047】獲得的氮化矽粉末由 β 型的氮化矽而形成，上述微粉碎中平均粒徑設為約 $1.8\mu\text{m}$ 。

【0048】秤量上述方法所獲得的氮化矽粉末100質量份、不含氧鍵的化合物 $\text{Y}_2\text{Si}_4\text{N}_6\text{C}$ 2質量份、 $\text{MgSi}_4\text{N}_6\text{C}$ 5質量份、氧化釔(yttria)3質量份，以水作為分散媒，使用樹脂筒及氮化矽球，以球磨機進行24小時的粉碎混合。再者，以漿料的濃度成為60質量%的方式事先秤量水，投入樹脂筒內。粉碎混合後，添加水系樹脂黏結劑22質量份，再進行12小時混合獲得漿料狀的成形用組成物。接著，將該成形用組成物經由刮刀法進行片狀成形，獲得寬度75cm、厚度0.3mm的片狀成形體。接著，將獲得的片狀成形體於乾燥空氣中以 550°C 的溫度進行脫脂處理，將脫脂後的成形體置入燒成容器，在氮環境及 $0.02\text{MPa}\cdot\text{G}$ 的壓力下，在 1780°C 進行9小時燒成，獲得氮化矽燒結體。獲得的氮化矽燒結體的鋁元素的總含量為200ppm。再者，關於獲得的氮化矽燒結體的各元素的固溶量及在室溫與

450℃ 的體積電阻率顯示於表 2。

【 0049】

【表 1】

	原料粉末											
	矽 Si (質量份)	稀釋劑 Si ₃ N ₄ (質量份)	添加元素(相對於矽及稀釋劑的總量的比率：質量%)									
			特定第一元素						特定第二元素			
			Ti	Ge	Zr	Ag	BaSO ₄	Hf	Na ₃ PO ₄	Cr	Mn	Fe
實施例 1	80	20	0.03	—	—	—	—	—	—	—	—	—
實施例 2	80	20	—	0.03	—	—	—	—	—	—	—	—
實施例 3	80	20	—	—	0.03	—	—	—	—	—	—	—
實施例 4	80	20	—	—	—	0.03	—	—	—	—	—	—
實施例 5	80	20	—	—	—	—	0.22	—	—	—	—	—
實施例 6	80	20	—	—	—	—	—	0.03	—	—	—	—
實施例 7	80	20	0.10	—	—	—	—	—	—	—	—	—
實施例 8	80	20	—	0.10	—	—	—	—	—	—	—	—
實施例 9	80	20	—	—	0.10	—	—	—	—	—	—	—
實施例 10	80	20	—	—	—	0.10	—	—	—	—	—	—
實施例 11	80	20	—	—	—	—	0.73	—	—	—	—	—
實施例 12	80	20	—	—	—	—	—	0.10	—	—	—	—
實施例 13	80	20	0.03	0.03	0.03	0.03	0.22	0.03	—	—	—	—
實施例 14	80	20	0.05	—	—	—	—	—	—	0.05	—	—
實施例 15	80	20	—	—	—	—	—	0.10	0.03	—	—	—
實施例 16	80	20	—	—	—	—	—	0.10	—	0.03	—	—
實施例 17	80	20	—	—	—	—	—	0.10	—	—	0.03	—
實施例 18	80	20	—	—	—	—	—	0.10	—	—	—	0.03
實施例 19	80	20	—	—	—	—	—	0.10	0.53	—	—	—
實施例 20	80	20	—	—	—	—	—	0.10	—	0.10	—	—
實施例 21	80	20	—	—	—	—	—	0.10	—	—	0.10	—
實施例 22	80	20	—	—	—	—	—	0.10	—	—	—	0.10
比較例 1	80	20	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
比較例 2	80	20	0.08	0.08	0.08	0.08	0.58	0.08	—	—	—	—

【 0050】

【表 2】

	元素的固溶濃度 (質量%)										體積電阻率 (Ω·cm)		含有特定第一元素的粒子比率 (%)
	特定第一元素						特定第二元素						
	Ti	Ge	Zr	Ag	Ba	Hf	P	Cr	Mn	Fe	室溫	450℃	
實施例 1	0.02	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	7.9×10 ¹⁴	4.2×10 ¹²	90
實施例 2	ND	0.02	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	8.1×10 ¹⁴	4.4×10 ¹²	90
實施例 3	ND	ND	0.02	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	8.4×10 ¹⁴	4.9×10 ¹²	90
實施例 4	ND	ND	ND	0.02	ND	ND	ND	ND	ND	ND	7.5×10 ¹⁴	3.7×10 ¹²	93
實施例 5	ND	ND	ND	ND	0.02	ND	ND	ND	ND	ND	7.6×10 ¹⁴	4.0×10 ¹²	90
實施例 6	ND	ND	ND	ND	ND	0.02	ND	ND	ND	ND	8.3×10 ¹⁴	4.7×10 ¹²	93
實施例 7	0.08	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	8.9×10 ¹⁴	6.5×10 ¹²	100
實施例 8	ND	0.08	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	9.0×10 ¹⁴	6.6×10 ¹²	100
實施例 9	ND	ND	0.08	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	9.3×10 ¹⁴	7.1×10 ¹²	100
實施例 10	ND	ND	ND	0.07	ND	ND	ND	ND	ND	ND	8.7×10 ¹⁴	6.1×10 ¹²	100
實施例 11	ND	ND	ND	ND	0.06	ND	ND	ND	ND	ND	8.8×10 ¹⁴	6.2×10 ¹²	100
實施例 12	ND	ND	ND	ND	ND	0.08	ND	ND	ND	ND	9.2×10 ¹⁴	6.9×10 ¹²	100
實施例 13	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	ND	ND	ND	ND	8.9×10 ¹⁴	8.6×10 ¹²	100
實施例 14	0.04	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.04	ND	ND	7.9×10 ¹⁴	1.0×10 ¹²	97
實施例 15	ND	ND	ND	ND	ND	0.08	0.02	ND	ND	ND	5.7×10 ¹⁴	2.4×10 ¹¹	100
實施例 16	ND	ND	ND	ND	ND	0.08	ND	0.02	ND	ND	6.2×10 ¹⁴	4.8×10 ¹¹	100
實施例 17	ND	ND	ND	ND	ND	0.08	ND	ND	0.02	ND	6.1×10 ¹⁴	4.3×10 ¹¹	100
實施例 18	ND	ND	ND	ND	ND	0.08	ND	ND	ND	0.02	5.9×10 ¹⁴	2.9×10 ¹¹	100
實施例 19	ND	ND	ND	ND	ND	0.08	0.06	ND	ND	ND	2.8×10 ¹⁴	1.3×10 ¹¹	100
實施例 20	ND	ND	ND	ND	ND	0.08	ND	0.08	ND	ND	2.1×10 ¹⁴	1.6×10 ¹¹	100
實施例 21	ND	ND	ND	ND	ND	0.08	ND	ND	0.07	ND	1.9×10 ¹⁴	1.4×10 ¹¹	100
實施例 22	ND	ND	ND	ND	ND	0.08	ND	ND	ND	0.08	1.6×10 ¹⁴	1.0×10 ¹¹	100
比較例 1	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	7.2×10 ¹⁴	6.1×10 ¹⁰	0
比較例 2	由於粒內析出無法測定固溶濃度										2.7×10 ⁹	—	0

【發明申請專利範圍】

【請求項1】一種氮化矽燒結體，其特徵在於，選自由Ti、Ge、Zr、Ag、Ba及Hf所成群組之至少一種的元素以0.01~0.15質量%的濃度以固溶方式包含於構成燒結體的氮化矽粒子中。

【請求項2】如請求項1所述之氮化矽燒結體，其中固溶於前述氮化矽粒子之P、Cr、Mn及Fe的元素的總計濃度為0.05質量%以下。