



(12) 发明专利申请

(10) 申请公布号 CN 118742513 A

(43) 申请公布日 2024. 10. 01

(21) 申请号 202380020935.3

(22) 申请日 2023.02.06

(30) 优先权数据

2022-018506 2022.02.09 JP

(85) PCT国际申请进入国家阶段日

2024.08.08

(86) PCT国际申请的申请数据

PCT/JP2023/003765 2023.02.06

(87) PCT国际申请的公布数据

W02023/153355 JA 2023.08.17

(71) 申请人 电化株式会社

地址 日本

(72) 发明人 南川孝明 塩月宏幸 狩野源太

(74) 专利代理机构 北京集佳知识产权代理有限公司 11227

专利代理师 朝鲁门

(51) Int.Cl.

C01B 33/18 (2006.01)

C08K 3/36 (2006.01)

C08L 101/00 (2006.01)

G01N 30/88 (2006.01)

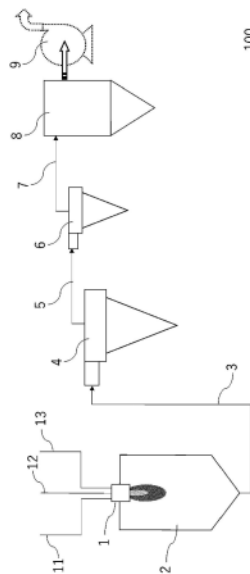
权利要求书1页 说明书8页 附图1页

(54) 发明名称

球状二氧化硅粉末

(57) 摘要

本实施方式的球状二氧化硅粉末的基于离子色谱法求出的 NO_3^- 的含量为5ppm以下。



1. 一种球状二氧化硅粉末,基于下述离子色谱法求出的 NO_3^- 的含量为5ppm以下;
离子色谱法:
将该球状二氧化硅粉末放入蒸馏水中,将其加热、冷却后,取得通过离心分离而得到的上清液作为提取液;通过离子色谱法求出该提取液中的 NO_2^- 浓度和 NO_3^- 浓度;基于得到的 NO_2^- 浓度、 NO_3^- 浓度,算出该球状二氧化硅粉末中含有的 NO_2^- 的含量、 NO_3^- 的含量。
2. 根据权利要求1所述的球状二氧化硅粉末,其构成为:
将基于所述离子色谱法求出的该球状二氧化硅粉末中含有的 NO_2^- 的含量设为 N_2 、将 NO_3^- 的含量设为 N_3 时, N_2 、 N_3 满足 $0.05 \leq N_3/N_2 \leq 30$ 。
3. 根据权利要求1或2所述的球状二氧化硅粉末,
在通过基于湿法的激光衍射散射法测定的体积频率粒度分布中,将累积值为10%的粒径设为 D_{10} 、累积值为50%的粒径设为 D_{50} 、累积值为97%的粒径设为 D_{97} 时,
 $(D_{97} - D_{10})/D_{50}$ 为1.0~10.0。
4. 根据权利要求1~3中任一项所述的球状二氧化硅粉末,
在通过基于湿法的激光衍射散射法测定的体积频率粒度分布中,将累积值为50%的粒径设为 D_{50} 、累积值为97%的粒径设为 D_{97} 时,
 D_{97}/D_{50} 为2.0~30.0。
5. 根据权利要求1~4中任一项所述的球状二氧化硅粉末,
非晶率为95%以上。
6. 根据权利要求1~5中任一项所述的球状二氧化硅粉末,
与所述离子色谱法同样地求出的该球状二氧化硅粉末中含有的 SO_3^{2-} 的含量和 SO_4^{2-} 的含量分别为10ppm以下。

球状二氧化硅粉末

技术领域

[0001] 本发明涉及球状二氧化硅粉末。

背景技术

[0002] 迄今为止对球状进行有各种开发。作为这种技术,例如已知专利文献1所记载的技术。专利文献1中记载了通过将二氧化硅质原料粉末喷射到火焰中进行熔融来得到熔融球状二氧化硅的方法。

[0003] 现有技术文献

[0004] 专利文献

[0005] 专利文献1:日本特开2000—191317号公报

发明内容

[0006] 然而,本发明人研究的结果发现,在上述专利文献1所记载的熔融球状二氧化硅中,在树脂组合物的制造稳定性方面有改善的余地。

[0007] 本发明人进一步研究后发现,通过火焰热喷涂法制造的球状二氧化硅粉末中有时存在氮氧化物(NO_x),该氮氧化物有可能会将导致将球状二氧化硅粉末配合于树脂中而成的树脂组合物的树脂特性发生变动。基于这样的见解进一步进行了深入研究,结果发现通过使球状二氧化硅粉末中含有的硝酸根离子量为规定值以下,能够抑制树脂组合物的固化特性的减少,因此能够提高其制造稳定性,从而完成了本发明。

[0008] 根据本发明的一个方面,提供以下球状二氧化硅粉末。

[0009] 1.一种球状二氧化硅粉末,基于下述离子色谱法求出的 NO_3^- 的含量为5ppm以下。

[0010] (离子色谱法)

[0011] 将该球状二氧化硅粉末放入蒸馏水中,将其加热、冷却后,取得通过离心分离而得到的上清液作为提取液。通过离子色谱法求出该提取液中的 NO_2^- 浓度和 NO_3^- 浓度。基于得到的 NO_2^- 浓度、 NO_3^- 浓度,算出该球状二氧化硅粉末中含有的 NO_2^- 的含量、 NO_3^- 的含量。

[0012] 2.根据1.所述的球状二氧化硅粉末,其构成为:

[0013] 将基于上述离子色谱法求出的该球状二氧化硅粉末中含有的 NO_2^- 的含量设为 N_2 、将 NO_3^- 的含量设为 N_3 时, N_2 、 N_3 满足 $0.05 \leq N_3/N_2 \leq 30$ 。

[0014] 3.根据1.或2.所述的球状二氧化硅粉末,

[0015] 在通过基于湿法的激光衍射散射法测定的体积频率粒度分布中,将累积值为10%的粒径设为 D_{10} 、累积值为50%的粒径设为 D_{50} 、累积值为97%的粒径设为 D_{97} 时,

[0016] $(D_{97} - D_{10}) / D_{50}$ 为1.0~10.0。

[0017] 4.根据1.~3.中任一项所述的球状二氧化硅粉末,

[0018] 在通过基于湿法的激光衍射散射法测定的体积频率粒度分布中,将累积值为50%的粒径设为 D_{50} 、累积值为97%的粒径设为 D_{97} 时,

[0019] D_{97}/D_{50} 为2.0~30.0。

- [0020] 5.根据1.~4.中任一项所述的球状二氧化硅粉末,
- [0021] 非晶率为95%以上。
- [0022] 6.根据1.~5.中任一项所述的球状二氧化硅粉末中,
- [0023] 与上述离子色谱法同样地求出的该球状二氧化硅粉末中含有的 SO_3^{2-} 的含量和 SO_4^{2-} 的含量分别为10ppm以下。
- [0024] 根据本发明,提供树脂组合物的制造稳定性优异的球状二氧化硅粉末。

附图说明

- [0025] 图1是表示用于制造球状二氧化硅粉末的热喷涂装置的构成的示意性截面图。

具体实施方式

- [0026] 说明本实施方式的球状二氧化硅粉末的概要。
- [0027] 本实施方式的球状二氧化硅粉末构成为基于下述离子色谱法求出的 NO_3^- 的含量为5ppm以下。
- [0028] 根据本发明人的见解发现,在通过火焰热喷涂法来制造球状二氧化硅粉末的工艺中,例如通过导入二次空气,适当控制其导入量,将捕集粉末的旋风分离器、袋式过滤器中的温度调整得较高,能够降低 NO_3^- 的含量。
- [0029] 虽然详细的机理尚不清楚,但已知助燃气体中含有的氮源来自于 NO_x ,通过在控制为高温环境的旋风分离器、袋式过滤器中抑制在捕集的二氧化硅粒子的表面产生结露,可以防止 NO_x 在结露中进行吸附而在二氧化硅粒子的表面残留 NO_x 。例如,通过抑制二次导入大气中的较低温的空气(冷却用介质)的量和/或二次导入较高温的燃烧排气等,能够将旋风分离器、袋式过滤器控制为高温环境。
- [0030] 球状二氧化硅粉末的 NO_3^- 的含量的上限为5ppm以下,优选为3ppm以下,更优选为1ppm以下。由此,能够抑制树脂组合物的固化性的降低。
- [0031] 另一方面,球状二氧化硅粉末的 NO_3^- 的含量的下限没有特别限定,可以为0ppm以上,也可以为0.01ppm以上。
- [0032] 球状二氧化硅粉末可以构成为将通过下述离子色谱法测定的该球状二氧化硅粉末中含有的 NO_2^- 的含量设为 N_2 、将 NO_3^- 的含量设为 N_3 时, N_2 、 N_3 满足 $0.05 \leq \text{N}_3/\text{N}_2 \leq 30$ 。
- [0033] N_3/N_2 的上限为30以下,优选为20以下,更优选为10以下。由此,能够抑制由树脂组合物引起的铜线腐蚀等金属材料的腐蚀。
- [0034] 另一方面, N_3/N_2 的下限没有特别限定,可以为0ppm以上,也可以为0.01ppm以上。
- [0035] 基于下述离子色谱法求出的该球状二氧化硅粉末中含有的 SO_3^{2-} 的含量和 SO_4^{2-} 的含量例如分别为10ppm以下,优选为8ppm以下,更优选为6ppm以下。通过使用含有这样的球状二氧化硅粉末的树脂组合物来形成电子装置的一部分,可期待能够提高电子装置的可靠性。
- [0036] 说明上述离子色谱法的步骤的一个例子。
- [0037] 首先,将球状二氧化硅粉末放入蒸馏水中,将该混合液放入容器中并振荡1分钟,然后在95°C下静置20小时,然后冷却。将蒸发量的水追加到容器中并定量。然后,进行离心分离,取得上清液作为提取液。

[0038] 接着,使用离子色谱法测定该提取液中的 NO_2^- 、 NO_3^- 、 SO_3^{2-} 和 SO_4^{2-} 的各浓度。

[0039] 基于通过测定而得到的浓度的值,分别算出球状二氧化硅粉末中含有的 NO_2^- 的含量、 NO_3^- 的含量、 SO_3^{2-} 的含量和 SO_4^{2-} 的含量。

[0040] 通过基于湿法的激光衍射散射法测定球状二氧化硅粉末的体积频率粒度分布,在该体积频率粒度分布中,将累积值为10%的粒径设为 D_{10} 、累积值为50%的粒径设为 D_{50} 、累积值为97%的粒径设为 D_{97} 。

[0041] $(D_{97}-D_{10})/D_{50}$ 的上限例如为10.0以下,优选为7.0以下,更优选为5.0以下。由此,粒度分布的宽度变得尖锐,能够提高流动性。

[0042] 另一方面, $(D_{97}-D_{10})/D_{50}$ 的下限例如为1.0以上,优选为1.1以上,更优选为2.0以上。由此,粒度分布具有一定的宽度,能够提高成型性。

[0043] D_{97}/D_{50} 的上限例如为30.0以下,优选为20.0以下,更优选为15.0以下。由此,粗大粒子的粒度变得尖锐,能够提高对由粗大粒子引起的树脂成型物的成型不良的抑制。

[0044] 另一方面, D_{97}/D_{50} 的下限例如为2.0以上,优选为3.0以上,更优选为5.0以上。由此,粒度分布具有一定的宽度,能够提高流动性和成型性。

[0045] 球状二氧化硅粉末的粒度分布是基于利用激光衍射光散射法的粒度测定的值,例如可以利用“型号LS-13-230”(Beckman Coulter公司制)作为粒度分布测定机进行测定。测定时,溶剂使用水,作为预处理,可以使用均化器施加200W的输出进行分散处理1分钟。另外,制备成使PIDS(Polarization Intensity Differential Scattering(偏振强度微分散射))浓度为45~55%。应予说明,水的折射率使用1.33,粉末的折射率使用考虑了粉末的材质的折射率。例如,对于非晶二氧化硅,以折射率为1.50进行测定。

[0046] 对本实施方式的球状二氧化硅粉末的制造方法进行说明。

[0047] 球状二氧化硅粉末也称为熔融球状粒子,在由可燃气体与助燃气体的燃烧反应而形成的高温火焰中供给二氧化硅质原料粉末,在其熔点以上进行熔融球状化而制造。如果需要,也可以对这样得到的熔融球状粒子进行分级、筛分处理。

[0048] 将用于制造球状二氧化硅粉末的热喷涂装置的概略图的一个例子示于图1。

[0049] 图1的热喷涂装置100由设置有燃烧器1的熔融炉2、用于通过鼓风机9的抽吸对由火焰的高温排气生成的熔融球状粒子进行分级的旋风分离器4、6、以及回收不能利用旋风分离器4、6捕集的微粉的袋式过滤器8构成。

[0050] 熔融炉2由立式炉体构成,但不限于此,也可以是水平放置而将火焰沿水平方向喷出的所谓卧式炉或倾斜炉。

[0051] 高温排气通过具备水冷夹套的配管3、5、7进行冷却。

[0052] 鼓风机9可以连接有未图示的抽吸气体量控制阀和气体排气口。

[0053] 熔融炉2、旋风分离器4、6和袋式过滤器8的下部可以连接有未图示的捕集粉抽出装置。

[0054] 分级可以使用具有重力沉降室、旋风分离器、旋转叶片的分级机等公知的设备来进行。该分级操作可以并入熔融球状化品的输送工序中进行,也可以统一捕集后在另一管路中进行。

[0055] 作为可燃气体,例如可使用乙炔、丙烷、丁烷等中的1种或2种以上,但优选发热量较小的丙烷、丁烷或其混合气体。

[0056] 作为助燃气体,例如可使用含有氧的气体。一般而言,使用99重量%以上的纯氧是廉价且最优选的。为了减少气体的发热量,也可以将空气、氩等非活性气体混合到助燃气体中。

[0057] 球状二氧化硅粉末可以是非晶和/或结晶。

[0058] 球状二氧化硅粉末例如通过下述方法测定的非晶率优选为95%以上,更优选为97%以上。非晶率是使用粉末X射线衍射装置(例如RIGAKU公司制商品名“型号MiniFlex”),在CuK α 射线的2 θ 为26°~27.5°的范围进行X射线衍射分析,由特定衍射峰的强度比测定。在二氧化硅质粉末的情况下,结晶二氧化硅在26.7°存在主峰,但在非晶二氧化硅中不存在峰。当非晶二氧化硅和结晶二氧化硅混合存在时,可得到与结晶二氧化硅的比例对应的26.7°的峰高,因此根据试样的X射线强度与结晶二氧化硅标准试样的X射线强度之比算出结晶二氧化硅混合比(试样的X射线衍射强度/结晶二氧化硅的X射线衍射强度),由公式非晶率(%)=(1-结晶二氧化硅混合比)×100求出非晶率。

[0059] 球状二氧化硅粉末优选通过BET法测定的比表面积 S_B 与由粒度分布计算的理论比表面积 S_C 之比(S_B/S_C)例如为2.5以下。该比大意味着含有许多无法利用激光衍射法等粒度分布测定机检测到的超微粒子。从抑制将球状二氧化硅粒子配合于树脂组合物时的粘度上升的观点出发,上述 S_B/S_C 的值更优选为2.5以下,特别是2.0以下。

[0060] 比表面积 S_B 是基于BET法的值,例如可以使用“型号4-SORBU2”(YUASA IONICS公司制)作为比表面积测定机进行测定。

[0061] 对于理论比表面积 S_C ,也可以利用上述粒度分布测定机进行自动计算。该测定机的原理基于公式 $S_C=6/(\rho \cdot D)$ 。式中, D 为面积平均粒径(μm), ρ 为球状二氧化硅粉末的密度(g/cm^3)。例如,如果粉末为非晶二氧化硅,则为2.21。

[0062] 应予说明, D 由公式 $D=\Sigma(n_i \cdot a_i \cdot d_i)/\Sigma(n_i \cdot a_i)$ 求出。这是指在一个粉末组中,具有粒径从小到大为 d_1 、 d_2 、 \dots 、 d_i 、 \dots 、 d_k 的粒径的粒子分别有 n_1 、 n_2 、 \dots 、 n_i 、 \dots 、 n_k 个,另外,当将每一个粒子的表面积分别设为 a_1 、 a_2 、 \dots 、 a_i 、 \dots 、 a_k 时, D 由 $D=(n_1 \cdot a_1 \cdot d_1+n_2 \cdot a_2 \cdot d_2+\dots+n_i \cdot a_i \cdot d_i+\dots+n_k \cdot a_k \cdot d_k)/(n_1 \cdot a_1+n_2 \cdot a_2+\dots+n_i \cdot a_i+\dots+n_k \cdot a_k)$ 求出。

[0063] 在球状二氧化硅粉末中,优选实质上不含有小于50nm的粒子。由此,能够抑制配合于树脂组合物时的粘度上升。

[0064] 实质上不含有小于50nm的粒子是指对利用电子显微镜以倍率50000倍拍摄的任意的100张照片中的小于50nm的粒子个数进行计数并换算为每1张照片的平均值的值小于50个。小于50nm的粒子优选较少。

[0065] 电子显微镜照片的拍摄可以使用场发射型扫描电子显微镜(日本电子株式会社制型号“FE-SEM、JSM-6301F”),在加速电压15kV、照射电流 3×10^{-11} A的条件下进行拍摄。作为拍摄的预处理,有利用真空蒸镀装置(日本电子株式会社制型号“JEE-4X”)对球状二氧化硅粉末蒸镀碳2秒后进一步蒸镀金-钼60秒的方法。

[0066] 作为球状二氧化硅粉末的“球状”的程度,例如优选具有小于累积粒度分布75%(d_{75})的粒径的粒子的平均球形度为0.90以上,具有 d_{75} 以上的粒径的粒子的平均球形度为0.85以上。一般而言,如果提高球状二氧化硅粉末的平均球形度,则有流动性提高的倾向,特别是通过将具有 d_{75} 以上的粒径的粗粒子的平均球形度设为0.85以上,能够进一步提高

本实施方式的效果。

[0067] 平均球形度可以将利用实体显微镜(例如Nikon公司制型号“SMZ—10型”)、扫描式电子显微镜等拍摄的粒子像导入图像分析装置(例如Nippon Avionics公司制等),按以下方式进行测定。即,由照片测定粒子的投影面积(A)和周长(PM)。如果将与周长(PM)对应的真圆的面积设为(B),则该粒子的真圆度可以表示为A/B。因此,如果假设具有与试样粒子的周长(PM)相同的周长的真圆,则由于 $PM=2\pi r$ 、 $B=\pi r^2$,所以成为 $B=\pi \times (PM/2\pi)^2$,各个粒子的球形度能够以球形度 $=A/B=A \times 4\pi / (PM)^2$ 的形式算出。可以求出这样得到的任意的200个粒子的真圆度,将其平均值作为平均球形度。

[0068] 应予说明,作为上述以外的真圆度的测定法,也可以由利用粒子像分析装置(例如Sysmex公司制型号“FPIA—1000”)定量地自动测定的各个粒子的圆形度,利用公式真圆度 $=$ (圆形度)²进行换算来求出。

[0069] 可以适当地使用将本发明的球状二氧化硅粉末配合于树脂组合物而成的材料作为树脂成型材料。

[0070] 接下来,对本实施方式的树脂组合物进行说明。

[0071] 树脂组合物除了本发明的球状二氧化硅粉末以外,还含有树脂、公知的树脂添加剂等。

[0072] 树脂组合物中,球状二氧化硅粉末可以单独使用,也可以与其他填料混合使用。树脂组合物中可以含有10~99质量%的球状二氧化硅粉末,或者也可以含有10~99质量%的含有球状二氧化硅粉末和其他填料的混合无机粉末。另外,混合无机粉末中,相对于球状二氧化硅粉末100质量%,其他填料的含量例如为1~20质量%,也可以为3~15质量%。

[0073] 应予说明,本说明书中,只要没有特别明示,“~”表示包含上限值和下限值。

[0074] 作为其他填料,例如可举出氧化铝、二氧化钛、氮化硅、氮化铝、碳化硅、滑石、碳酸钙等。其他填料的平均粒径使用5~100 μm 左右,对其粒度构成和形状没有特别限制。

[0075] 作为上述树脂,例如可举出环氧树脂;有机硅树脂;酚醛树脂;三聚氰胺树脂;脲醛树脂;不饱和聚酯;氟树脂;聚酰亚胺、聚酰胺酰亚胺、聚醚酰亚胺等聚酰胺;聚对苯二甲酸丁二醇酯、聚对苯二甲酸乙二醇酯等聚酯;聚苯硫醚;全芳香族聚酯;聚砜;液晶聚合物;聚醚砜;聚碳酸酯;马来酰亚胺改性树脂;ABS树脂、AAS(丙烯腈丙烯酸橡胶苯乙烯)树脂、AES(丙烯腈、乙烯、丙烯、二烯橡胶-苯乙烯)树脂等。它们可以单独使用或组合使用2种以上。

[0076] 树脂组合物例如可以通过将规定量比的原料成分利用混合机、亨舍尔混合机等混合后利用加热辊、捏合机、单螺杆或双螺杆挤出机等混炼,冷却后进行粉碎来制造。

[0077] 以上,对本发明的实施方式进行了说明,但这些都是本发明的例示,可以采用上述以外的各种构成。另外,本发明不限于上述实施方式,能够实现本发明的目的的范围内的变形、改良等包含在本发明中。

[0078] 实施例

[0079] 以下,参照实施例对本发明进行详细说明,但本发明不受这些实施例的记载任何限定。

[0080] <球状二氧化硅粉末的制造>

[0081] 使用图1所示的热喷涂装置100制造球状二氧化硅粉末,该热喷涂装置在熔融炉2的上部设置有燃烧器1,在下部直接连接有由旋风分离器4、6、袋式过滤器8构成的捕集系管

路。

[0082] 燃烧器1具有能够形成内焰和外焰的双管结构,设置于熔融炉2的顶部,分别连接可燃气体供给管11、助燃气体供给管12、原料供给管13。

[0083] 在熔融炉2内,从原料供给管13将二氧化硅质原料粉末供给到高温火焰中,使其熔融,能够形成经球状化的熔融球状粒子。通过熔融炉2的熔融球状粒子与燃烧排气一起被鼓风机9抽吸,在配管3、5、7内随空气移动,由旋风分离器4、6或袋式过滤器8分级、捕集。

[0084] (实施例1)

[0085] 使用上述热喷涂装置100,从可燃气体供给管11供给作为可燃性气体的LPG,从助燃气体供给管12供给作为助燃气体的空气或氧,在燃烧器1中,通过LPG与氧的燃烧而形成高温火焰。

[0086] 利用设置于配管3的未图示的旋转阀向旋风分离器4(第一旋风分离器)供给二次空气。二次空气使用大气中的空气。另外,将旋风分离器4和旋风分离器6(第二旋风分离器)的下部的阀的开闭程度(下部开度)设为100%。进而,从配管7也同样地供给二次空气。作为二氧化硅质原料粉末,将天然硅石粉碎,使用平均粒径(D_{50})为5~40 μm 的粉碎物,将由旋风分离器4和旋风分离器6、袋式过滤器8捕集的熔融球状粒子分别作为球状二氧化硅粉末回收。

[0087] 这样,调整火焰形成条件、原料粒度、原料供给量、分级条件、混合条件等,制造表1所示的13种粉体。中位径的调整通过原料粒度的调整、球状化处理后的粉体的多级筛分操作、以及调整由上述操作得到的粗粒子、中粒子、微粒子、超微粒子等的混合量来进行。

[0088] (实施例2~12)

[0089] 将实施例1的二次空气供给量设为V(kg/h)时,实施例2中为1.3倍量的1.3V,实施例3中为0.6倍量的0.6V,例4中为1.1倍量的1.1V,实施例5中为0.9倍量的0.9V,实施例6中为0.7倍量的0.7V,实施例7~12中为1倍量的1V,在此基础上进行粒度调整,除此之外,与上述实施例1同样地得到球状二氧化硅粉末。

[0090] (比较例1)

[0091] 将实施例1的二次空气供给量设为V(kg/h)时,以成为3倍量的1V的方式供给大量的二次空气,进行粒度调整,除此之外,与上述实施例7同样地得到球状二氧化硅粉末。

[0092]

表1

二氧化硅粉末		单位	实施例1	实施例2	实施例3	实施例4	实施例5	实施例6	实施例7	实施例8	实施例9	实施例10	实施例11	实施例12	比较例1	
含量	NO ₂ ⁻		0.10	0.15	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10
	NO ₃ ⁻	ppm	0.95	2.77	0.92	0.34	1.05	0.30	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	7.30
	SO ₃ ²⁻		<2	<2	<2	<2	<2	<2	<2	<2	<2	<2	<2	<2	<2	<2
	SO ₄ ²⁻		3.5	2.2	2.0	2.0	1.3	3.3	2.6	3.7	4.5	3.7	3.7	5.1	4.4	4.4
粒度分布	D ₁₀	μm	2.3	2.3	2.3	3.4	2.7	2.3	3.1	2.5	2.2	1.9	2.4	2.3	3.2	3.2
	D ₅₀		20.4	16.5	27.6	40.2	31.1	21.5	33.0	24.3	30.4	17.1	31.5	27.2	20.1	20.1
	D ₉₇		102.7	107.0	95.1	110.8	108.8	101.1	108.6	103.1	105.6	76.9	81.9	82.1	111.3	111.3
	D ₉₇ /D ₅₀		5.0	6.5	3.4	2.8	3.5	4.7	3.3	4.2	3.5	4.5	2.6	3.0	5.5	5.5
(D ₉₇ -D ₁₀)/D ₅₀			4.9	6.3	3.4	2.7	3.4	4.6	3.2	4.1	3.4	4.4	2.5	2.9	5.4	5.4
制造稳定性			良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	不良

[0093] <含量:NO₂⁻、NO₃⁻、SO₃²⁻、SO₄²⁻>

[0094] 将得到的球状二氧化硅粉末10g和蒸馏水70g放入聚乙烯容器中并振荡1分钟后，

放入干燥机中并在95°C下静置20小时后冷却。追加蒸发量的水并定量。然后,进行离心分离,将上清液作为提取液。

[0095] 通过离子色谱法测定该提取液中的 NO_2^- 、 NO_3^- 、 SO_3^{2-} 和 SO_4^{2-} 的各浓度。基于测定的浓度的值,算出该球状二氧化硅粉末中含有的 NO_2^- 的含量、 NO_3^- 的含量、 SO_3^{2-} 的含量和 SO_4^{2-} 的含量。将实施例的结果示于表1。

[0096] <粒度分布>

[0097] 对于得到的球状二氧化硅粉末,使用粒度分布测定装置(Beckman Coulter公司制,LS-13-230),通过基于湿法的激光衍射散射法求出体积频率粒度分布。溶剂使用水,作为预处理,使用均化器施加200W的输出进行分散处理1分钟来测定。另外,以使PIDS(Polarization Intensity Differential Scattering)浓度为45~55%的方式进行制备并测定。

[0098] 基于得到的体积频率粒度分布,算出累积值为X%的粒径 D_x 。

[0099] <树脂组合物的制造稳定性>

[0100] 在得到的球状二氧化硅粉末90质量%中加入4,4'-双(2,3-环氧丙氧基)-3,3',5,5'-四甲基联苯型环氧树脂4.2质量%、酚醛树脂4.3质量%、三苯基磷0.2质量%、 γ -缩水甘油氧基丙基三甲基硅烷0.5质量%、炭黑0.3质量%、巴西棕榈蜡0.5质量%,利用亨舍尔混合机进行干混,然后将得到的配合物在双螺杆挤出混炼机(加热器温度105~110°C)中加热混炼,利用冷却机将产物冷却后粉碎,得到树脂组合物。

[0101] 确认了使用实施例1~12的球状二氧化硅粉末的树脂组合物没有固化不良,实用上没有问题,可以使用(良好)。另一方面,确认了使用比较例1的球状二氧化硅粉末的树脂组合物产生固化不良(不良)。

[0102] 实施例1~12的球状二氧化硅粉末与比较例1相比,显示能够提高树脂组合物的制造稳定性的结果。

[0103] 本申请主张以2022年2月9日申请的日本申请特愿2022-018506号为基础的优先权,并将其全部公开内容并入本文。

[0104] 符号说明

[0105] 1燃烧器

[0106] 2熔融炉

[0107] 3配管

[0108] 4旋风分离器

[0109] 5配管

[0110] 6旋风分离器

[0111] 7配管

[0112] 8袋式过滤器

[0113] 9鼓风机

[0114] 11可燃气体供给管

[0115] 12助燃气体供给管

[0116] 13原料供给管

[0117] 100热喷涂装置

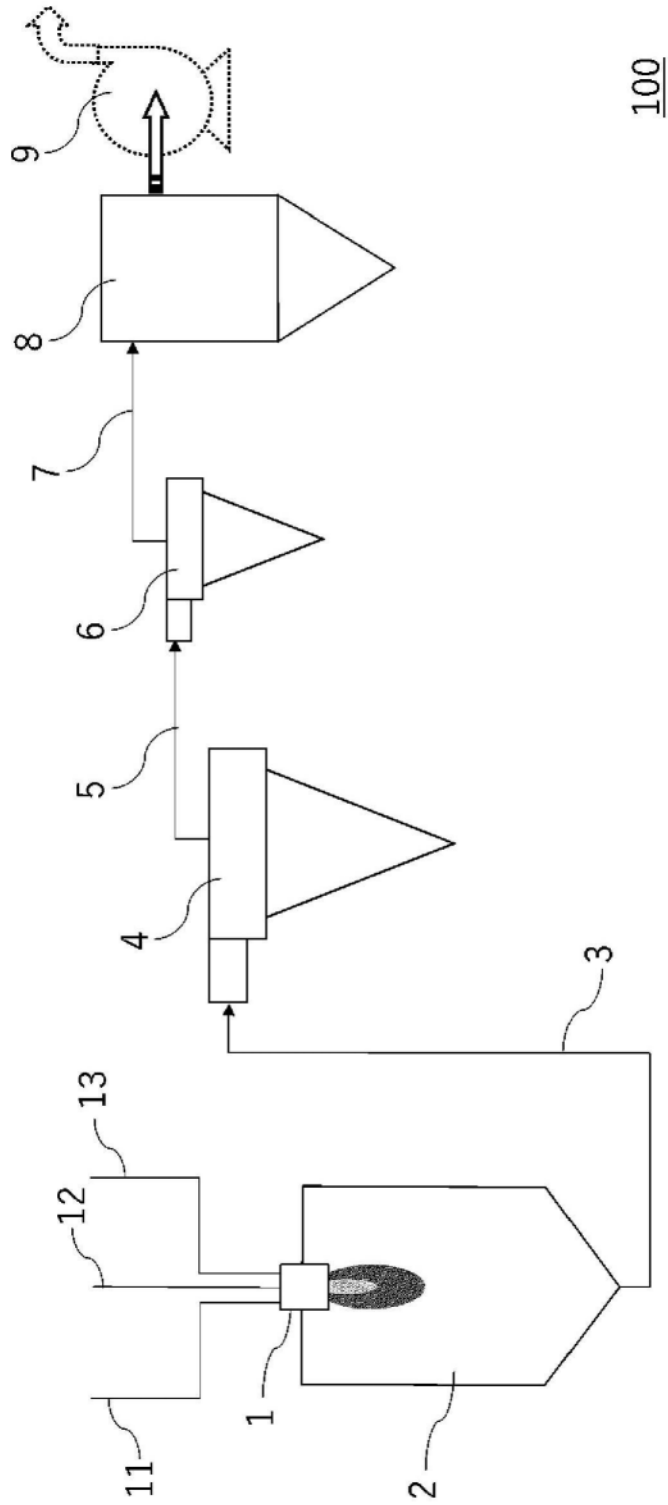


图1