



(21)申請案號：111139105

(22)申請日：中華民國 111 (2022) 年 10 月 14 日

(51)Int. Cl. : C01F5/08 (2006.01)

C08K3/22 (2006.01)

C08L101/00 (2006.01)

(30)優先權：2021/10/15 日本

2021-169606

(71)申請人：日商達泰豪化學工業股份有限公司(日本) TATEHO CHEMICAL INDUSTRIES CO., LTD. (JP)

日本

(72)發明人：齋藤彰範 SAITO, AKINORI (JP)

(74)代理人：洪武雄；陳昭誠

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：12 項 圖式數：1 共 27 頁

(54)名稱

球狀氧化鎂、其製造方法、樹脂填充材及樹脂組成物

(57)摘要

本發明之目的在於提供一種真球度高、且耐濕性及對樹脂之填充性優異的球狀氧化鎂及其製造方法。

本發明之球狀氧化鎂，係屬於周期表第 3 周期至第 4 周期之元素(但，屬於第 2 族及第 18 族之元素除外)及鈮之合計含量為 500 至 12,000ppm，且以雷射繞射散射式粒度分布測定所得到的體積基準之累積 50%粒徑(D₅₀)為 1 至 200 μ m 之範圍，從 SEM 照片讀取之真球度為 1.00 至 1.20。

An object of the present invention is to provide spherical magnesium oxide having high sphericity, excellent moisture resistance, and excellent fillability in resin, and a method for producing the same.

In the spherical magnesium oxide of the present invention, the total content of the elements in periods 3 to 4 of the periodic table (but the elements belonging to groups 2 and 18 are excluded) and yttrium is 500 to 12,000 ppm, and the volume-based cumulative 50% particle diameter (D₅₀) obtained by particle size distribution measured by laser diffraction scattering is in the range of 1 to 200 μ m, and the sphericity read from an SEM photograph is 1.00 to 1.20.

【發明摘要】

【中文發明名稱】 球狀氧化鎂、其製造方法、樹脂填充材及樹脂組成物

【英文發明名稱】 SPHERICAL MAGNESIUM OXIDE, METHOD FOR PRODUCING THE SAME, RESIN FILLER AND RESIN COMPOSITION

【中文】

本發明之目的在於提供一種真球度高、且耐濕性及對樹脂之填充性優異的球狀氧化鎂及其製造方法。

本發明之球狀氧化鎂，係屬於周期表第 3 周期至第 4 周期之元素(但，屬於第 2 族及第 18 族之元素除外)及鈮之合計含量為 500 至 12,000ppm，且以雷射繞射散射式粒度分布測定所得到的體積基準之累積 50%粒徑(D₅₀)為 1 至 200 μ m 之範圍，從 SEM 照片讀取之真球度為 1.00 至 1.20。

【英文】

An object of the present invention is to provide spherical magnesium oxide having high sphericity, excellent moisture resistance, and excellent fillability in resin, and a method for producing the same.

In the spherical magnesium oxide of the present invention, the total content of the elements in periods 3 to 4 of the periodic table (but the elements belonging to groups 2 and 18 are excluded) and yttrium is 500 to 12,000 ppm, and the volume-based cumulative 50% particle diameter

(D₅₀) obtained by particle size distribution measured by laser diffraction scattering is in the range of 1 to 200 μm, and the sphericity read from an SEM photograph is 1.00 to 1.20.

【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】 球狀氧化鎂、其製造方法、樹脂填充材及樹脂組成物

【英文發明名稱】 SPHERICAL MAGNESIUM OXIDE, METHOD FOR
PRODUCING THE SAME, RESIN FILLER AND
RESIN COMPOSITION

【技術領域】

【0001】 本發明係關於一種真球度高、且耐濕性優異的球狀氧化鎂及其製造方法、以及含有前述球狀氧化鎂之樹脂填充材、及含有該樹脂填充材之樹脂組成物。

【先前技術】

【0002】 氧化鎂係電性絕緣性、導熱性、耐熱性等優異，且作為耐火物原料、加熱器用絕緣材、研磨材、橡膠之加硫促進劑、塗料/印墨用顏料等工業用材料係可使用於各式各樣的用途。又，為了對樹脂賦予耐熱性等之特性作為目的，亦可使用來作為樹脂填充材。在專利文獻 1 中，為了對使用於食品等之包裝用途的樹脂膜賦予阻氣性的目的，可使用氧化鎂。在專利文獻 2 中，係使用氧化鎂作為添加於樹脂之白色顏料。在專利文獻 3 中，為了改善樹脂之耐光性的目的，可使用氧化鎂。在專利文獻 4 中，為了提昇環氧基樹脂之導熱性的目的，可使用氧化鎂。然而，調配於樹脂時，氧化鎂因吸濕性高，且會與大氣中之水分進行水合，產生因填充材之體積膨脹所致的龜裂等之問題，故希望一種在長期間使用亦不會產生上述之問

題的耐濕性優異的氧化鎂。又，使用氧化鎂作為樹脂填充材時，為了獲得優異的性能，亦被要求對樹脂組成物之高填充性。

【0003】 使用氧化鎂作為樹脂填充材時，必須有填充性與耐濕性。在專利文獻 5 中，提出一種藉由添加鋰化合物所獲得之表面平滑且緻密的球狀氧化鎂。在專利文獻 6 中，提出一種藉由使硼與鐵之含量調整至一定之範圍所獲得之表面平滑且耐濕性及填充性優異的球狀氧化鎂。在專利文獻 7 中，提出一種藉由使硼與鋰之含量調整至一定之範圍所獲得之耐濕性及填充於樹脂時之樹脂組成物的流動性優異的球狀氧化鎂。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

【0004】

[專利文獻 1] 日本特開 2015-131494 號公報

[專利文獻 2] 日本特開 2015-101614 號公報

[專利文獻 3] 日本特開 2009-227725 號公報

[專利文獻 4] 日本特開 2017-186578 號公報

[專利文獻 5] 日本特開 2016-088838 號公報

[專利文獻 6] 日本特開 2018-131378 號公報

[專利文獻 7] 國際公開第 2020/203710 號

【發明內容】

[發明所欲解決的課題]

【0005】然而，藉由上述方法所得的球狀氧化鎂，雖然耐濕性及對樹脂之填充性被改善，但仍必須控制硼含量或鋰含量。又，因含有許多硼或鋰，故氧化鎂之特性(絕緣性、耐熱性、導熱性)會降低，以及此等之元素容易溶出到樹脂，故仍有對電子機器等之最終製品的性能造成不良影響之問題。再者，若在氧化鎂中含有鋰，因對填充於樹脂時之樹脂組成物的流動性會造成不良影響，故希望鋰之含量少。因此，本發明之課題在於提供一種即使含有一定量的硼或鋰，亦可獲得真球度高、且耐濕性及對樹脂之填充性優異的球狀氧化鎂及其製造方法。

[解決課題的手段]

【0006】為了解決上述課題，本發明人等累積各種研究之結果，發現藉由調整屬於周期表第 3 周期至第 4 周期之元素(但，屬於第 2 族及第 18 族之元素除外)的含量，即使不含有一定量的硼或鋰，亦可獲得真球度高、且耐濕性及對樹脂之填充性優異的球狀氧化鎂。又，發現除了調整屬於周期表第 3 周期至第 4 周期之元素(但，屬於第 2 族及第 18 族之元素除外)以外，調整鈮之含量，亦可有效地獲得真球度高、且耐濕性及對樹脂之填充性優異的球狀氧化鎂。

【0007】亦即，本發明之球狀氧化鎂，係屬於周期表第 3 周期至第 4 周期之元素(但，屬於第 2 族及第 18 族之元素除外)及鈮之合計含量為 500 至 12,000ppm，且以雷射繞射散射式粒度分布測定所得到的體積基準之累積 50%粒徑(D_{50})為 1 至 200 μm 之範圍，從 SEM 照片讀取之真球度為 1.00 至 1.20。

【0008】又，本發明之球狀氧化鎂，係屬於周期表第 3 周期至第 4 周期之元素(但，屬於第 2 族及第 18 族之元素除外)之合計含量為 500 至 12,000ppm，且以雷射繞射散射式粒度分布測定所得到的體積基準之累積 50%粒徑(D₅₀)為 1 至 200 μ m 之範圍，從 SEM 照片讀取之真球度為 1.00 至 1.20。

【0009】又，本發明係有關一種含有上述球狀氧化鎂之樹脂填充材。

【0010】又，本發明係有關一種含有上述樹脂填充材之樹脂組成物。

【0011】又，本發明係有關一種球狀氧化鎂之製造方法，係包含下列步驟：

1) 使鎂鹽水溶液與碳酸鹽水溶液反應之後，使所生成的碳酸鎂凝集而獲得球狀碳酸鎂漿液之步驟；

2) 使前述球狀碳酸鎂漿液進行過濾、水洗及乾燥，而獲得球狀碳酸鎂粒子之步驟；

3) 燒製前述球狀碳酸鎂粒子，而獲得球狀氧化鎂之步驟；

在前述 1)至 3)之 1 個以上的步驟中，以在燒製後之球狀氧化鎂中的屬於周期表第 3 周期至第 4 周期之元素(但，屬於第 2 族及第 18 族之元素除外)及鈮的合計含量成為 500 至 12,000ppm 之方式，調整屬於周期表第 3 周期至第 4 周期之元素(但，屬於第 2 族及第 18 族之元素除外)及鈮的量。

【0012】又，本發明係有關一種球狀氧化鎂之製造方法，係包含下列步驟：

1) 使鎂鹽水溶液與碳酸鹽水溶液反應之後，使所生成的碳酸鎂凝集而獲得球狀碳酸鎂漿液之步驟；

2) 使前述球狀碳酸鎂漿液進行過濾、水洗及乾燥，而獲得球狀碳酸鎂粒子之步驟；

3) 燒製前述球狀碳酸鎂粒子，而獲得球狀氧化鎂之步驟；

在前述 1) 至 3) 之 1 個以上的步驟中，以在燒製後之球狀氧化鎂中的屬於周期表第 3 周期至第 4 周期之元素(但，屬於第 2 族及第 18 族之元素除外)的合計含量成為 500 至 12,000ppm 之方式，調整屬於周期表第 3 周期至第 4 周期之元素(但，屬於第 2 族及第 18 族之元素除外)的量。

[發明效果]

【0013】 若依據本發明，可提供一種真球度高、且耐濕性及對樹脂之填充性優異的球狀氧化鎂及其製造方法。

【圖式簡單說明】

【0014】

圖 1 係呈示實施例 1 之球狀氧化鎂的 SEM 照片。

【實施方式】

【0015】 本發明之球狀氧化鎂，係屬於周期表第 3 周期至第 4 周期之元素(但，屬於第 2 族及第 18 族之元素除外)及鉍的合計含量為 500 至 12,000ppm，且以雷射繞射散射式粒度分布測定所得到的體積基準之累積 50% 粒徑(D_{50})為 1 至 200 μm 之範圍，從 SEM 照片讀取之真球度為 1.00 至 1.20。

係含有上述預定量之選自由鋁、矽、磷、錳、鈦、及鈷所成群組中之一種以上。又，例如，本發明之球狀氧化鎂係例如，可含有上述預定量之選自由鋁、矽、磷、錳、及鈦所成群組中之一種以上，亦可含有上述預定量之選自由鋁、矽、及鈦所成群組中之一種以上。

【0023】在本發明中，即使不含有一定量的硼，亦可獲得耐濕性優異、真球度高且表面平滑的球狀氧化鎂，故可使硼之含量降至極低。因此，在本發明中，硼含量例如可未達 10ppm，較佳係未達 9ppm，更佳係未達 8ppm。藉由降低硼之含量，可防止氧化鎂之特性降低。又，因可降低硼溶出到樹脂中，故使用於電子機器等之用途時，可防止電子電路之錯誤。

【0024】在本發明中，即使不含一定量的鋰，亦可獲得耐濕性優異、真球度高且表面平滑的球狀氧化鎂，故可使鋰含量降至極低。因此，在本發明中，鋰含量例如可未達 15ppm，較佳係未達 10ppm，更佳係未達 5ppm。藉由降低鋰含量，可防止氧化鎂之絕緣性降低。又，因可降低鋰溶出到樹脂中之，故可防止最終製品之性能降低。

【0025】在本發明中，鈣含量係例如，可設為未達 700ppm，較佳係未達 600ppm，更佳係未達 500ppm。鈣含量為 700ppm 以上時，耐濕性容易降低，又，會有不易獲得真球度高的球狀氧化鎂之傾向。

【0026】在本發明中，以雷射繞射散射式粒度分布測定所得到的體積基準之累積 50% 粒徑(D_{50})係 1 至 200 μm 之範圍，較佳係可設為 5 至 100 μm ，更佳係可設為 10 至 50 μm 。又，例如，亦以 10 至 150 μm 為較佳範圍。

【0027】在本發明中，從對樹脂之填充性造成影響之 SEM 照片讀取之真球度為 1.00 至 1.20，較佳係可設為 1.00 至 1.15，更佳係可設為 1.00 至

1.10。又，在本發明中，對於使用掃描型電子顯微鏡(SEM)而拍攝的電子顯微鏡照片之 100 個粒子，計算出通過粒子中心的長徑與短徑之長度，求出長徑／短徑之比，以其平均值作為真球度。

【0028】本發明中，BET 比表面積例如，為 0.01 至 $1.00\text{m}^2/\text{g}$ ，較佳係 0.05 至 $0.80\text{m}^2/\text{g}$ ，更佳係 0.10 至 $0.60\text{m}^2/\text{g}$ 。

【0029】在本發明之球狀氧化鎂的製造方法並無特別限制，但例如，可如以下方式進行製造。

【0030】1) 使鎂鹽水溶液與碳酸鹽水溶液反應之後，使所生成的碳酸鎂凝集而獲得球狀碳酸鎂漿液；

2) 使前述球狀碳酸鎂漿液進行過濾、水洗及乾燥，而獲得球狀碳酸鎂粒子；

3) 在大氣中燒製前述球狀碳酸鎂粒子，而獲得目的之球狀氧化鎂。

此時，至最終燒製為止，以在最終燒製後之球狀氧化鎂中之屬於周期表第 3 周期至第 4 周期的元素(但，屬於第 2 族及第 18 族之元素除外)及鉕之合計含量成為 500 至 $12,000\text{ppm}$ 之方式，以添加、混合等調整屬於周期表第 3 周期至第 4 周期之元素(但，屬於第 2 族及第 18 族之元素除外)的量。

【0031】屬於周期表第 3 周期至第 4 周期之元素(但，屬於第 2 族及第 18 族之元素除外))及鉕之合計含量的調整，具體而言，係進行 a) 在鎂鹽水溶液及／或碳酸鹽水溶液中添加包含上述元素之化合物、b) 在所得到的球狀碳酸鎂漿液中添加包含上述元素之化合物、c) 在所得到的球狀碳酸鎂粒

子中混合包含上述元素的化合物等而調整最終所得到的球狀氧化鎂中之含量。

【0032】 又，例如，可如以下方式進行製造。

【0033】 1) 使鎂鹽水溶液與碳酸鹽水溶液反應之後，使所生成的碳酸鎂凝集而獲得球狀碳酸鎂漿液；

2) 使前述球狀碳酸鎂漿液進行過濾、水洗及乾燥，而獲得球狀碳酸鎂粒子；

3) 在大氣中燒製前述球狀碳酸鎂粒子，而獲得目的之球狀氧化鎂。

此時，至最終燒製為止，以在最終燒製後之球狀氧化鎂中之屬於周期表第 3 周期至第 4 周期的元素(但，屬於第 2 族及第 18 族之元素除外)之合計含量成為 500 至 12,000ppm 之方式，以添加、混合等調整屬於周期表第 3 周期至第 4 周期之元素(但，屬於第 2 族及第 18 族之元素除外)的量。

【0034】 屬於周期表第 3 周期至第 4 周期之元素(但，屬於第 2 族及第 18 族之元素除外)之合計含量的調整，具體而言，係進行 a)在鎂鹽水溶液及／或碳酸鹽水溶液中添加包含上述元素之化合物、b)在所得到的球狀碳酸鎂漿液中添加包含上述元素之化合物、c)在所得到的球狀碳酸鎂粒子中混合包含上述元素的化合物等而調整最終所得到的球狀氧化鎂中之含量。

【0035】 在此，使用於上述添加、混合等之化合物係只要為包含屬於周期表第 3 周期至第 4 周期之元素(但，屬於第 2 族及第 18 族之元素除外)的化合物，並無特別限定而可使用。又，有關鉍，亦只要為包含鉍之化合物，並無特別限定而可使用。

【0036】 作為鋁源係只要為包含鋁之化合物即可，並無特別限定，但，例如，可使用氫氧化鋁、氧化鋁、碳酸鋁、氯化鋁、硝酸鋁、乙酸鋁、硫酸鋁等。

【0037】 作為矽源係只要為包含矽之化合物即可，並無特別限定，但，例如可使用氧化矽、矽酸鹽等。作為氧化矽係例如，可列舉結晶性二氧化矽、非晶質氣相式二氧化矽、膠體二氧化矽等。作為矽酸鹽係例如，可列舉矽酸鈉、矽酸鎂、矽酸鉀、矽酸鈣等。

【0038】 作為磷源係只要為包含磷之化合物即可，並無特別限定，但，例如，可使用磷酸、磷酸鹽等。作為磷酸鹽係例如，可列舉磷酸鎂、磷酸鈉、磷酸鉀、磷酸銨等。

【0039】 作為氯源係只要為包含氯之化合物即可，並無特別限定，但，例如，可列舉氯化鈉、氯化鎂、氯化鉀、氯化鈣等。

【0040】 作為溴源係只要為包含溴之化合物即可，並無特別限定，但，例如，可列舉溴化鈉、溴化鎂、溴化鉀、溴化鈣等。

【0041】 作為鈉源係只要為包含鈉之化合物即可，並無特別限定，但，例如，可列舉氯化鈉、碳酸鈉、磷酸鈉、氫氧化鈉、硝酸鈉等。

【0042】 作為鉀源係只要為包含鉀之化合物即可，並無特別限定，但，例如，可列舉氯化鉀、碳酸鉀、磷酸鉀、氫氧化鉀、硝酸鉀等。

【0043】 作為鈦源係只要為包含鈦之化合物即可，並無特別限定，但，例如，可列舉氧化鈦(銳鈦礦型、金紅石型)、氯化鈦、氫氧化鈦、溴化鈦、氟化鈦、鈦酸鎂等。

【0044】 作為錳源係只要為包含錳之化合物即可，並無特別限定，但，例如，可列舉二氧化錳、氫氧化錳、碳酸錳、氯化錳及硝酸錳等。

【0045】 作為鉍源係只要為包含鉍之化合物即可，並無特別限定，但，例如，可列舉氧化鉍、氯化鉍及硝酸鉍等。

【0046】 又，例如，較佳係使最終燒製後之球狀氧化鎂的硼含量控制成未達 10ppm，使鋰含量控制成未達 15ppm，使鈣含量控制成未達 700ppm。降低硼含量、鋰含量及鈣含量之方法並無特別限定，但，例如，可使用反覆操作前驅體碳酸鎂餅塊之再漿液化及過濾後水洗之再漿洗、以鎂鹽水溶液之吸附劑所進行的前處理之實施、燒製時之昇溫輪廓調整等已知的製程，或者組合此等而使用。又，亦可通過選擇不含此等元素之原材料，在製造步驟中適當地控制混入的可能性，即可壓低上述各元素之含量。

【0047】 在上述鎂鹽水溶液中之鎂鹽並無特別限定，但，例如，可選自氯化鎂、硝酸鎂、硫酸鎂及乙酸鎂以及此等之組合而使用。

【0048】 在上述碳酸鹽水溶液中之碳酸鹽並無特別限定，但，例如，可選自碳酸鈉、碳酸鉀及碳酸銨以及此等之組合而使用。

【0049】 鎂鹽水溶液之鎂鹽濃度係以 1 至 30 質量%為較佳，碳酸鹽水溶液之碳酸鹽濃度係以 1 至 30 質量%為較佳。鎂鹽水溶液與碳酸鹽水溶液之反應係例如，可以溶液中之 $[Mg^{2+}]$ ： $[CO_3^{2-}]$ 的離子濃度比成為 1.2：1 至 1：1.5 之條件來進行。

【0050】 在本發明之球狀氧化鎂的製造方法中，首先，使鎂鹽水溶液與碳酸鹽水溶液反應之後，使所生成之碳酸鎂凝集而獲得球狀碳酸鎂漿液。在此，使鎂鹽水溶液與碳酸鹽水溶液反應而產生之碳酸鎂係例如，加溫至

60 至 100°C 之溫度，保持 0.1 至 5 小時，可適當凝集成以雷射繞射散射式粒度分布測定所得到的體積基準之累積 50% 粒徑(D_{50})為 1 至 200 μm 、真球度為 1.00 至 1.30 之球狀。

【0051】凝集成球狀之碳酸鎂漿液係例如，藉由在該技術領域中之一般的方法，而進行過濾、水洗、乾燥並形成為球狀碳酸鎂粒子。

【0052】在上述製造方法所得到的碳酸鎂粒子可為無水碳酸鎂、正碳酸鎂、鹼性碳酸鎂之任一者，但以鹼性碳酸鎂為較佳。

【0053】球狀碳酸鎂粒子之燒製條件係只要為碳酸鎂熱分解成氧化鎂之範圍即可，並無特別限定，但，例如，較佳係使溫度設為 1000°C 至 1800°C，更佳係設為 1100°C 至 1700°C，特佳係設為 1200°C 至 1600°C。燒製時間係依燒製溫度而定，但例如，以 0.5 至 10 小時為較佳。若燒製溫度未達 1000°C，則未充分燒結，而若超過 1800°C，因粒子彼此間會進行燒結並形成粗大的凝集體，故調整成上述範圍。

【0054】本發明之球狀氧化鎂，其特徵係即使不進行表面處理，亦具有充分的耐濕性，但，為了進一步改善耐濕性之目的，亦可使用公知之方法而施予表面處理。對本發明之球狀氧化鎂施予表面處理時，使用之表面處理劑並無特別限定，但，例如，可使用膠體二氧化矽、矽烷系偶合劑、氧化鈦溶膠、鈦酸酯系偶合劑、磷化合物、氧化鋁溶膠、鋁酸酯系偶合劑、鋇系偶合劑等。

【0055】作為矽烷系偶合劑係例如，可列舉乙烯基三氯矽烷、乙烯基三烷氧基矽烷、環氧丙氧基丙基三烷氧基矽烷、甲基丙烯醯氧基丙基甲基二烷氧基矽烷等。

【0056】作為鈦酸酯系偶合劑係例如，可列舉四異丙基鈦酸酯、四正丁基鈦酸酯、四辛基鈦酸酯、四硬脂基鈦酸酯、異丙基三異硬脂醯基鈦酸酯、四辛基雙(雙十三烷基亞磷酸酯)鈦酸酯、雙(二辛基焦磷酸酯)氧乙酸酯鈦酸酯等。

【0057】作為磷化合物係例如，只要可與氧化鎂反應而形成磷酸鎂系化合物之化合物即可，並無特別限定，但，例如，可列舉磷酸、磷酸鹽、酸性磷酸酯。此等係可單獨使用，亦可併用 2 種以上。作為酸性磷酸酯係例如，可列舉異丙基酸性磷酸酯、2-乙基己基酸性磷酸酯、油基酸性磷酸酯、甲基酸性磷酸酯、乙基酸性磷酸酯、丙基酸性磷酸酯、丁基酸性磷酸酯、月桂基酸性磷酸酯、硬脂基酸性磷酸酯等。

【0058】作為鋁酸酯系偶合劑係例如，可列舉鋁異丙酸酯、單第二丁氧基鋁二異丙酸酯、鋁第二丁酸酯、鋁乙基乙醯基乙酸酯二異丙酸酯、鋁參(乙基乙醯基乙酸酯)、鋁烷基乙醯基乙酸酯二異丙酸酯等。

【0059】作為鋇系偶合劑係例如，可列舉正丙基鋇酸酯、正丁基鋇酸酯等。

【0060】本發明之球狀氧化鎂，因真球度高、耐濕性優異、且對樹脂之填充性亦優異，故適合作為填充材而調配於樹脂中，可用來作為樹脂填充材。例如，可適合使用來作為導熱性填充材、耐熱性填充材、阻氣性填充材、耐光性填充材等，其中，作為導熱性填充材為優異。

【0061】可在本發明使用的樹脂，例如，可列舉熱硬化性樹脂、或熱塑性樹脂。作為熱硬化性樹脂並無特別限定，但，例如，可列舉酚樹脂、尿素樹脂、三聚氰胺樹脂、醇酸樹脂、聚酯樹脂、環氧樹脂、酞酸二烯丙

酯樹脂、聚胺基甲酸乙酯樹脂、或聚矽氧樹脂。作為熱塑性樹脂並無特別限定，但，例如，可列舉聚醯胺樹脂、聚縮醛樹脂、聚碳酸酯樹脂、聚對苯二甲酸丁二酯樹脂、聚烯烴樹脂、聚砜樹脂、聚醯胺醯亞胺樹脂、聚醯醯亞胺樹脂、聚芳酸酯樹脂、聚苯硫醚樹脂、聚醚醚酮樹脂、氟樹脂、或液晶聚合物。

【0062】在本發明之樹脂組成物中的球狀氧化鎂之調配量係只要依照樹脂組成物所要求的特性而適當決定即可，並無特別限定。但，就一例而言，相對於樹脂 100 質量份，只要在球狀氧化鎂 0.1 至 100 質量份之範圍使用即可。

【0063】包含本發明之球狀氧化鎂的樹脂組成物係可依照其樹脂之特性而在各種領域進行利用。

[實施例]

【0064】藉由下述實施例而詳細地說明本發明，但此等實施例係在任何的意義中並非用來限制本發明者。

【0065】 <測定方法/評定方法>

(1) 元素含量之測定方法

元素含量之測定係藉由 ICP 發光分光分析來進行。使測定試料加入酸中而完全溶解之後，使用 ICP 測定裝置(PS3520 VDD、日立 High Tech Science 股份有限公司製)測定各元素之含量。又，在下述表 1 及 2 中，係各元素之含量低於檢測極限時，設為痕跡量而標示為 < 1ppm。

【0066】 (2) BET 比表面積之測定方法

使用比表面積測定裝置(Macsorb、Mountech Co. Ltd.製)，而藉由使用氮氣之氣體吸附法(BET 法)，測定 BET 比表面積。

【0067】 (3) 體積基準之累積 50%粒徑(D₅₀)

精密秤量測定試料 $0.1 \times 10^{-3} \text{kg}$ ，以 40mL 之甲醇進行分散，並使用雷射繞射散射式粒度分布測定裝置(MT3300 日機裝股份有限公司製)進行測定。

【0068】 (4) 從 SEM 照片讀取到之真球度及表面的平滑性

使用掃描型電子顯微鏡(SEM)(JSM6510LA 日本電子股份有限公司製)。對於所拍攝之電子顯微鏡照片的 100 個粒子，計測通過粒子中心的長徑與短徑之長度，求出長徑/短徑之比，以其平均值作為真球度。又，對於以掃描型電子顯微鏡(SEM)所拍攝之電子顯微鏡照片的球狀氧化鎂之表面狀態，微細粒子幾乎不存在於球狀氧化鎂表面，使表面成為平滑者設為○，在球狀氧化鎂表面存在複數之微細粒子，但表面成為平滑者或微細粒子幾乎不存在於表面，但表面為凹凸且不平滑者設為△，在球狀氧化鎂表面存在複數之微細粒子，且表面為凹凸且不平滑者設為×，進行評定。

【0069】 (5) 以恆溫恆濕試驗所進行的耐濕性評定

球狀氧化鎂之耐濕性係藉由以恆溫恆濕試驗所得到的質量增加率來評定。恆溫恆濕機係使用 ADVANTECH 東洋股份有限公司製 THN040FA。使用恆溫恆濕機而求出在 85°C 85% RH 之環境下使球狀氧化鎂 10g 曝露 168 小時後的質量增加率。

【0070】 <實施例 1>

使硝酸鎂六水合物(關東化學公司製 特級)溶解於離子交換水中，調製約 20 質量%之硝酸鎂水溶液。使碳酸鉀(關東化學公司製 特級)溶解於離子交換水中，調整約 15 質量%之碳酸鉀水溶液。以 $[\text{Mg}^{2+}] : [\text{CO}_3^{2-}]$ 之離子濃度比成為 1 : 1 之方式，使硝酸鎂水溶液與碳酸鉀水溶液反應而合成碳酸鎂。反應後，加熱碳酸鎂漿液至 90°C 為止，保持 1 小時，準備球狀碳酸鎂之漿液。於其中，以最終所得到的球狀氧化鎂中之矽含量成為 2,500ppm 之方式添加二氧化矽(關東化學公司製 特級)後，進行過濾、水洗、乾燥，獲得球狀碳酸鎂粒子。使用電爐在 1500°C 下燒製所得到的球狀碳酸鎂粒子 1 小時，獲得球狀氧化鎂粒子。又，燒製前之球狀碳酸鎂粒子的粒徑(D_{50})為 20.5 μm ，真球度為 1.12。

【0071】 <實施例 2>

除了添加二氧化矽(關東化學公司製 特級)以使最後所得到的球狀氧化鎂中之矽含量成為 5,000ppm 以外，其餘係藉由與實施例 1 相同之方法，獲得球狀氧化鎂。又，燒製前之球狀碳酸鎂粒子的粒徑(D_{50})為 20.3 μm ，真球度為 1.12。

【0072】 <實施例 3>

除了添加氧化鋁(關東化學公司製 鹿特級)取代二氧化矽之添加，以使最後所得到的球狀氧化鎂中之鋁含量成為 2,500ppm 以外，其餘係藉由與實施例 1 相同之方法，獲得球狀氧化鎂。又，燒製前之球狀碳酸鎂粒子的粒徑(D_{50})為 20.2 μm ，真球度為 1.13。

【0073】 <實施例 4>

除了添加氧化鈦(關東化學公司製 銳鈦礦型 鹿 1 級)取代二氧化矽之添加，以使最後所得到的球狀氧化鎂中之鈦含量成為 7,500ppm 以外，其餘係藉由與實施例 1 相同之方法，獲得球狀氧化鎂。又，燒製前之球狀碳酸鎂粒子的粒徑(D₅₀)為 20.5 μ m，真球度為 1.13。

【0074】 <比較例 1>

除了不進行二氧化矽之添加以外，其餘係藉由與實施例 1 相同之方法，獲得球狀氧化鎂。又，燒製前之球狀碳酸鎂粒子的粒徑(D₅₀)為 19.8 μ m、真球度為 1.12。

【0075】 <結果>

對於實施例 1 至 4 及比較例 1 之球狀氧化鎂，進行上述之測定及評定。結果呈示於以下表 1 中。又，表 1 所示以外之屬於周期表第 3 周期至第 4 周期的各元素之含量係任一者皆為 10ppm 以下。又，鉍元素之含量為 10ppm 以下。

【0076】 [表 1]

	實施例 1	實施例 2	實施例 3	實施例 4	比較例 1
鋁含量 (ppm)	3	4	2,523	10	4
矽含量 (ppm)	2,509	5,080	10	28	11
鈦含量 (ppm)	<1	<1	<1	7,435	<1
硼含量 (ppm)	<1	<1	2	<1	<1
鋰含量 (ppm)	<1	<1	<1	<1	<1
鈣含量 (ppm)	21	23	34	18	25
D ₅₀ (μ m)	14.7	14.1	13.9	15.2	12.5
BET 比表面積 (m ² /g)	0.31	0.30	0.58	0.20	22.20
耐濕性 (質量增加%)	2.14	1.72	6.86	1.02	40.90
真球度	1.04	1.05	1.10	1.05	1.29
表面狀態	○	○	○	○	×

【0077】 從表 1，明顯可知實施例 1 至 4 之球狀氧化鎂之真球度高，且耐濕性亦優異。另一方面，比較例之球狀氧化鎂之真球度、耐濕性皆差。

【0078】 再者，如下述，獲得實施例 5 至 9 之球狀氧化鎂，與實施例 1 至 4 及比較例 1 相同，進行測定及評定。

【0079】 < 實施例 5 >

除了添加二氧化矽(關東化學公司製 特級)以使最後所得到的球狀氧化鎂中之矽含量成為 700ppm，及使燒製溫度設為 1600°C 以外，其餘係藉由與實施例 1 相同之方法，獲得球狀氧化鎂。

【0080】 < 實施例 6 >

除了添加二氧化矽(關東化學公司製 特級)以使最後所得到的球狀氧化鎂中之矽含量成為 11,500ppm，及使燒製溫度設為 1600°C 以外，其餘係藉由與實施例 1 相同之方法，獲得球狀氧化鎂。

【0081】 < 實施例 7 >

除了添加三聚磷酸鈉(關東化學公司製 鹿 1 級)取代二氧化矽之添加，以使最後所得到的球狀氧化鎂中之磷含量成為 1,200ppm，及使燒製溫度設為 1600°C 以外，其餘係藉由與實施例 1 相同之方法，獲得球狀氧化鎂。

【0082】 < 實施例 8 >

除了添加氯化錳四水合物(關東化學公司製 特級)取代二氧化矽之添加，以使最後所得到的球狀氧化鎂中之錳含量成為 9,000ppm，及使燒製溫度設為 1600°C 以外，其餘係藉由與實施例 1 相同之方法，獲得球狀氧化鎂。

【0083】 < 實施例 9 >

除了添加硝酸鉍六水合物(關東化學公司製 高純度試藥)取代二氧化矽之添加，以使最後所得到的球狀氧化鎂中之鉍含量成為 4,500ppm，及使燒製溫度設為 1600°C 以外，其餘係藉由與實施例 1 相同之方法，獲得球狀氧化鎂。

【0084】 <結果>

對於實施例 5 至 9 之球狀氧化鎂，與實施例 1 至 4 及比較例 1 為相同，進行測定及評定。結果呈示於以下表 2 中。又，表 2 所示以外的屬於周期表第 3 周期至第 4 周期之各元素的含量係任一者皆為 10ppm 以下。

【0085】 [表 2]

	實施例 5	實施例 6	實施例 7	實施例 8	實施例 9
鋁含量 (ppm)	136	79	8	21	11
矽含量 (ppm)	649	11618	23	27	32
鈦含量 (ppm)	<1	<1	<1	<1	<1
硼含量 (ppm)	<1	<1	<1	<1	<1
鋰含量 (ppm)	<1	<1	<1	<1	<1
鈣含量 (ppm)	9	21	23	11	258
磷含量 (ppm)	<1	<1	1139	<1	<1
錳含量 (ppm)	<1	<1	<1	8457	<1
鉍含量 (ppm)	<1	<1	<1	<1	4524
D ₅₀ (μ m)	18.8	19.9	24.6	20.4	16.8
BET 比表面積 (m ² /g)	0.12	0.16	0.09	0.11	0.11
耐濕性 (質量增加%)	1.12	1.34	4.56	1.42	2.95
真球度	1.07	1.03	1.03	1.06	1.05
表面狀態	○	○	○	○	○

【0086】 從表 2 明顯可知，實施例 5 至 9 之球狀氧化鎂之真球度高，且耐濕性亦優異。

【0087】 由此可知本發明之球狀氧化鎂之真球度高、且耐濕性優異。因此，可知本發明之球狀氧化鎂係可用來作為優異的樹脂填充材。

[產業上之可利用性]

【0088】本發明之球狀氧化鎂因真球度高、且耐濕性優異，故可用來作為優異的樹脂填充材。

【符號說明】

無。

【發明申請專利範圍】

【請求項1】一種球狀氧化鎂，係屬於周期表第 3 周期至第 4 周期之元素(但，屬於第 2 族及第 18 族之元素除外)及鉍的合計含量為 500 至 12,000ppm，且以雷射繞射散射式粒度分布測定所得到的體積基準之累積 50%粒徑(D₅₀)為 1 至 200 μ m 之範圍，從 SEM 照片讀取之真球度為 1.00 至 1.20。

【請求項2】一種球狀氧化鎂，係屬於周期表第 3 周期至第 4 周期之元素(但，屬於第 2 族及第 18 族之元素除外)的合計含量為 500 至 12,000ppm，且以雷射繞射散射式粒度分布測定所得到的體積基準之累積 50%粒徑(D₅₀)為 1 至 200 μ m 之範圍，從 SEM 照片讀取之真球度為 1.00 至 1.20。

【請求項3】如請求項 1 或 2 所述之球狀氧化鎂，其中，前述屬於周期表第 3 周期至第 4 周期之元素為選自由鈉、鋁、矽、磷、氯、鉀及鈦所成群組中之一種以上。

【請求項4】如請求項 1 至 3 中任一項所述之球狀氧化鎂，其中，硼之含量未達 10ppm。

【請求項5】如請求項 1 至 4 中任一項所述之球狀氧化鎂，其中，鋰之含量未達 15ppm。

【請求項6】如請求項 1 至 5 中任一項所述之球狀氧化鎂，其中，鈣之含量未達 700ppm。

【請求項7】如請求項 1 至 6 中任一項所述之球狀氧化鎂，其中，累積 50%粒徑(D₅₀)為 5 至 100 μ m 之範圍。

【請求項8】 如請求項 1 至 7 中任一項所述之球狀氧化鎂，其中，BET 比表面積為 0.01 至 $1.00\text{m}^2/\text{g}$ 。

【請求項9】 一種樹脂填充材，係含有請求項 1 至 8 中任一項所述之球狀氧化鎂。

【請求項10】 一種樹脂組成物，係含有請求項 9 所述的樹脂填充材。

【請求項11】 一種球狀氧化鎂之製造方法，係包含下列步驟：

1) 使鎂鹽水溶液與碳酸鹽水溶液反應之後，使所生成的碳酸鎂凝集而獲得球狀碳酸鎂漿液之步驟；

2) 使前述球狀碳酸鎂漿液進行過濾、水洗及乾燥，而獲得球狀碳酸鎂粒子之步驟；

3) 燒製前述球狀碳酸鎂粒子，而獲得球狀氧化鎂之步驟；

在前述 1)至 3)之 1 個以上的步驟中，以在燒製後之球狀氧化鎂中之屬於周期表第 3 周期至第 4 周期的元素(但，屬於第 2 族及第 18 族之元素除外)及鈮之合計含量成為 500 至 $12,000\text{ppm}$ 之方式，調整屬於周期表第 3 周期至第 4 周期之元素(但，屬於第 2 族及第 18 族之元素除外)及鈮的量。

【請求項12】 一種球狀氧化鎂之製造方法，係包含下列步驟：

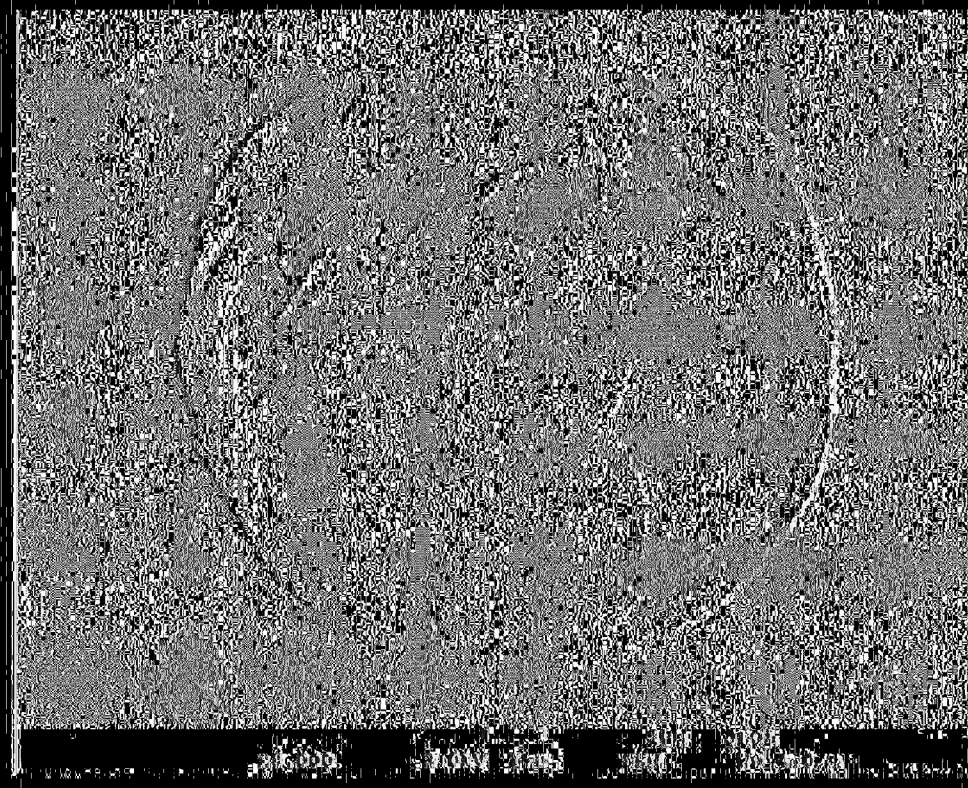
1) 使鎂鹽水溶液與碳酸鹽水溶液反應之後，使所生成的碳酸鎂凝集而獲得球狀碳酸鎂漿液之步驟；

2) 使前述球狀碳酸鎂漿液進行過濾、水洗及乾燥，而獲得球狀碳酸鎂粒子之步驟；

3) 燒製前述球狀碳酸鎂粒子，而獲得球狀氧化鎂之步驟；

在前述 1)至 3)之 1 個以上的步驟中，以在燒製後之球狀氧化鎂中之屬於周期表第 3 周期至第 4 周期的元素(但，屬於第 2 族及第 18 族之元素除外)之合計含量成為 500 至 12,000ppm 之方式，調整屬於周期表第 3 周期至第 4 周期之元素(但，屬於第 2 族及第 18 族之元素除外)的量。

【發明】
【式】



【式】