



등록특허 10-2658545



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2024년04월17일
(11) 등록번호 10-2658545
(24) 등록일자 2024년04월15일

- (51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C01B 21/064 (2006.01) *C08K 3/38* (2006.01)
C08L 101/00 (2006.01) *H05K 7/20* (2006.01)
- (52) CPC특허분류
C01B 21/064 (2013.01)
C01B 21/0645 (2013.01)
- (21) 출원번호 10-2021-7033669
- (22) 출원일자(국제) 2020년03월25일
심사청구일자 2021년10월19일
- (85) 번역문제출일자 2021년10월19일
- (65) 공개번호 10-2021-0138720
- (43) 공개일자 2021년11월19일
- (86) 국제출원번호 PCT/JP2020/013479
- (87) 국제공개번호 WO 2020/196679
국제공개일자 2020년10월01일
- (30) 우선권주장
JP-P-2019-062911 2019년03월28일 일본(JP)
- (56) 선행기술조사문헌
JP2018030752 A*
WO2015119198 A1
WO2017038512 A1
JP2017165609 A
- *는 심사관에 의하여 인용된 문헌
- (73) 특허권자
덴카 주식회사
일본국, 도쿄, 추오-구, 니혼바시-무로마치 2
초메, 1-1
- (72) 발명자
다케다 고
일본 도쿄도 주오구 니혼바시무로마치 2초메 1반
1고 덴카 주식회사 내
다나카 다카아키
일본 도쿄도 주오구 니혼바시무로마치 2초메 1반
1고 덴카 주식회사 내
- (74) 대리인
제일특허법인(유)

전체 청구항 수 : 총 11 항

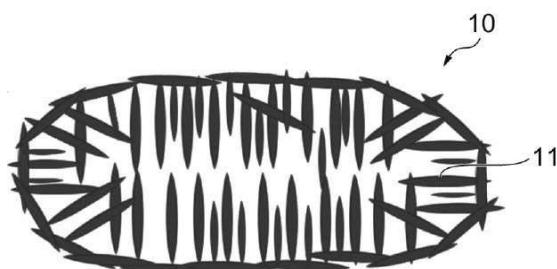
심사관 : 김광철

(54) 발명의 명칭 **질화 봉소 분말 및 그의 제조 방법, 및 복합재 및 방열 부재**

(57) 요 약

인편상의 1차 입자가 응집하여 구성되는 괴상 입자를 포함하고, 1차 입자는, 그 면내 방향이 괴상 입자의 짧은 방향과 평행 방향으로 배향하고 있는 질화 봉소 분말을 제공한다. 또한, 어스펙트비가 1.5~10인 탄화 봉소 분말을, 질소 가압 분위기하에서 소성하여 소성물을 얻는 질화 공정과, 소성물과 봉소원을 포함하는 배합물을 가열하여 인편상인 질화 봉소의 1차 입자를 생성하고, 1차 입자가 응집하여 구성되는 괴상 입자를 포함하는 질화 봉소 분말을 얻는 결정화 공정을 갖는, 질화 봉소 분말의 제조 방법을 제공한다.

대 표 도 - 도1



(52) CPC특허분류

C01B 21/0648 (2013.01)

C08K 3/38 (2013.01)

C08L 101/00 (2013.01)

H05K 7/20481 (2013.01)

C01P 2004/50 (2013.01)

C01P 2004/54 (2013.01)

C01P 2004/61 (2013.01)

C01P 2006/32 (2013.01)

명세서

청구범위

청구항 1

인편상의 1차 입자가 응집하여 구성되는 괴상 입자를 포함하고,

상기 괴상 입자의 주사형 전자 현미경의 화상에 있어서, 가장 간격이 커지도록 선택되는 상기 괴상 입자의 외연의 2점을 잇는 장변의 길이를 La , 및 해당 장변과 직교하는 방향에 있어서 가장 간격이 커지도록 선택되는 상기 외연 상의 2점을 잇는 단변의 길이를 Lb 라고 했을 때 $La > Lb$ 이고,

상기 단변에 평행한 방향을 짧은 방향으로 했을 때에, 상기 1차 입자는, 그 면내 방향이 상기 괴상 입자의 상기 짧은 방향과 평행 방향으로 배향하고 있고,

배향성 지수 [$I(002)/I(100)$]가 6.5 이하인, 질화 봉소 분말.

청구항 2

삭제

청구항 3

삭제

청구항 4

제 1 항에 있어서,

상기 배향성 지수가 2.0 이상 6.0 미만인, 질화 봉소 분말.

청구항 5

인편상의 1차 입자가 응집하여 구성되는 괴상 입자를 포함하고,

상기 괴상 입자의 주사형 전자 현미경의 화상에 있어서, 가장 간격이 커지도록 선택되는 상기 괴상 입자의 외연의 2점을 잇는 장변의 길이를 La , 및 해당 장변과 직교하는 방향에 있어서 가장 간격이 커지도록 선택되는 상기 외연 상의 2점을 잇는 단변의 길이를 Lb 라고 했을 때 $La > Lb$ 이고,

상기 단변에 평행한 방향을 짧은 방향으로 했을 때에, 상기 1차 입자는, 그 면내 방향이 상기 괴상 입자의 상기 짧은 방향과 평행 방향으로 배향하고 있고,

평균 입경이 $15\sim200\text{ }\mu\text{m}$ 인, 질화 봉소 분말.

청구항 6

제 1 항 또는 제 4 항에 있어서,

상기 괴상 입자의 어스펙트비가 $1.3\sim9.0$ 인, 질화 봉소 분말.

청구항 7

어스펙트비가 $1.5\sim10$ 인 단화 봉소 분말을, 질소 가압 분위기하에서 소성하여 소성물을 얻는 질화 공정과,

상기 소성물과 봉소원을 포함하는 배합물을 가열하여 인편상인 질화 봉소의 1차 입자를 생성하고, 상기 1차 입자가 응집하여 구성되는 괴상 입자를 포함하는 질화 봉소 분말을 얻는 결정화 공정을 갖는, 질화 봉소 분말의 제조 방법.

청구항 8

제 7 항에 있어서,

상기 괴상 입자의 주사형 전자 현미경의 화상에 있어서, 가장 간격이 커지도록 선택되는 상기 괴상 입자의 외연의 2점을 잇는 장변의 길이를 La, 및 해당 장변과 직교하는 방향에 있어서 가장 간격이 커지도록 선택되는 상기 외연 상의 2점을 잇는 단변의 길이를 Lb라고 했을 때 $La > Lb$ 이고,

상기 단변에 평행한 방향을 짧은 방향으로 했을 때에,

상기 결정화 공정에서는, 상기 1차 입자의 면내 방향이 상기 괴상 입자의 상기 짧은 방향과 평행 방향으로 배향하고 있는 상기 질화 봉소 분말을 얻는, 질화 봉소 분말의 제조 방법.

청구항 9

제 7 항 또는 제 8 항에 있어서,

상기 결정화 공정에서는, 배향성 지수 [$I(002)/I(100)$]가 6.5 이하인 상기 질화 봉소 분말을 얻는, 질화 봉소 분말의 제조 방법.

청구항 10

인편상의 1차 입자가 응집하여 구성되는 괴상 입자를 포함하는 질화 봉소 분말과, 수지를 함유하고, 배향성 지수 [$I(002)/I(100)$]가 6.0 이하인 복합재.

청구항 11

제 1 항 또는 제 4 항에 기재된 질화 봉소 분말과 수지를 함유하는 복합재.

청구항 12

제 10 항에 기재된 복합재를 갖는 방열 부재.

청구항 13

제 1 항 또는 제 4 항에 있어서,

평균 입경이 $15\sim200\text{ }\mu\text{m}$ 인, 질화 봉소 분말.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 개시는 질화 봉소 분말 및 그의 제조 방법, 및 복합재 및 방열 부재에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 질화 봉소는, 윤활성, 고열전도성, 및 절연성 등을 갖고 있어, 고체 윤활제, 전도성 필러, 절연성 필러 등의 용도에 꼭넓게 이용되고 있다. 근년, 전자 기기의 고성능화 등에 의해, 열전도성이 우수할 것이 요구되고 있다.

[0003] 인편상인 질화 봉소의 열특성은, 통상 이방성을 갖는다. 즉, 두께 방향(c 축 방향)의 열전도율이, 두께 방향에 수직한 면내 방향($a-b$ 면내 방향)의 열전도성보다도 극단적으로 낮은 것이 알려져 있다. 예를 들면, a 축 방향의 열전도율이 $400\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ 인 데 비해, c 축 방향의 열전도율은 $2\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ 이다. 이 때문에, 예를 들면, 질화 봉소 분말을 수지에 충전한 복합재의 열특성은, 복합재 중에서의 질화 봉소 입자의 배향 상태에 크게 영향을 받는다. 예를 들면, 프레스하여 시트상으로 성형된 복합재를 제작하면, 많은 경우에는, 질화 봉소 입자는 프레스 방향과는 수직 방향으로 배향되어, 프레스 방향의 열전도성이 낮아진다. 이와 같은 현상을 회피하기 위해, 특허문헌 1에서는, 질화 봉소 미립자를, 평균 원형도가 0.80 이상인 구 형상으로 하는 것이 시도되고 있다.

[0004] 또한, 특허문헌 2에서는, 질화 봉소 분말의 피크 강도비 [$I(002)/I(100)$]를 작게 해서 열전도율의 이방성을 작게 하는 것이 제안되어 있다.

선행기술문헌

특허문헌

[0005] (특허문헌 0001) 국제 공개 제2015/122379호

(특허문헌 0002) 일본 특허공개 2014-40341호 공보

발명의 내용

해결하려는 과제

[0006] 도 9 및 도 10은, 종래의 괴상 입자의 표면 및 단면을 각각 나타내는 주사형 전자 현미경 사진이다. 도 9 및 도 10에 나타내는 바와 같이, 괴상 입자에 포함되는 1차 입자가 무배향인 경우, 열전도성의 이방성을 저감할 수 있다. 그 한편으로, 전자 부품 내의 회로의 고집적화에 수반하여, 종래보다도 더 높은 방열 특성을 갖는 방열 부재, 및 이에 적합하게 이용되는 질화 붕소 분말 및 복합재가 요구되고 있다.

[0007] 그래서, 본 개시는 충분히 높은 열전도율을 갖는 질화 붕소 분말 및 그의 제조 방법, 및 복합재를 제공한다. 또한, 본 개시는 방열 특성이 충분히 우수한 방열 부재를 제공한다.

과제의 해결 수단

[0008] 본 개시의 일 측면에 따른 질화 붕소 분말은, 인편상의 1차 입자가 응집하여 구성되는 괴상 입자를 포함하고, 1차 입자는, 그 면내 방향이 괴상 입자의 짧은 방향과 평행 방향으로 배향하고 있다. 이에 의해, 괴상 입자의 짧은 방향에 있어서의 열전도율을 충분히 높게 할 수 있다. 따라서, 예를 들면, 1축 프레스하여 질화 붕소 분말과 수지를 포함하는 복합재로 했을 때에, 1축 프레스 방향에 있어서의 열전도율을 충분히 높게 할 수 있다. 이와 같은 복합재는, 방열 부재로서 극히 유용하다. 한편, 본 개시에 있어서의 「면내 방향이 괴상 입자의 짧은 방향과 평행 방향으로 배향한다」란, 모든 1차 입자의 면내 방향이 짧은 방향과 평행일 필요는 없다. 예를 들면, 일부 또는 모든 1차 입자의 면내 방향이 짧은 방향과 완전히 평행이 아니어도 된다. 즉, 면내 방향이 평행 방향으로부터 어긋나 있더라도, 무배향인 경우보다도 평행 방향에 가까운 방향을 따라 일부 또는 모든 1차 입자가 정렬되어 있으면 된다.

[0009] 본 개시의 다른 측면에 따른 질화 붕소 분말은, 인편상의 1차 입자가 응집하여 구성되는 괴상 입자를 포함하고, 배향성 지수[I(002)/I(100)]가 6.5 이하이다. 이 질화 붕소 분말은, 두께 방향에 수직한 면내 방향에 있어서의 열전도율이 충분히 높은 인편상의 1차 입자가 응집하여 구성되는 괴상 입자를 포함한다. 그리고, 배향성 지수[I(002)/I(100)]가 6.5 이하이기 때문에, 1차 입자의 배향성을 양호하게 할 수 있다. 따라서, 복합재 또는 방열 부재 등에 이용되었을 때에, 열전도율을 충분히 높게 할 수 있다.

[0010] 상기 배향성 지수는 2.0 이상 6.0 미만이어도 된다. 이에 의해, 열전도율을 한층 높게 할 수 있다.

[0011] 상기 질화 붕소 분말의 평균 입경은 15~200 μm 여도 된다. 이에 의해, 열전도율을 한층 높게 할 수 있다.

[0012] 상기 질화 붕소 분말의 어스펙트비는 1.3~9.0이어도 된다. 이에 의해, 복합재 또는 방열 부재에 이용되었을 때에, 열전도율을 충분히 높게 할 수 있다.

[0013] 본 개시의 일 측면에 따른 질화 붕소 분말의 제조 방법은, 어스펙트비가 1.5~10인 탄화 붕소 분말을, 질소 가압 분위기하에서 소성하여 소성물을 얻는 질화 공정과, 당해 소성물과 붕소원을 포함하는 배합물을 가열하여 인편상인 질화 붕소의 1차 입자를 생성하고, 당해 1차 입자가 응집하여 구성되는 괴상 입자를 포함하는 질화 붕소 분말을 얻는 결정화 공정을 갖는다.

[0014] 이 제조 방법에서는, 어스펙트비가 1.5~10인 탄화 붕소 분말을 이용하고 있기 때문에, 당해 형상에서 유래하는 형상을 갖는 괴상 입자를 얻을 수 있다. 인편상인 질화 붕소의 1차 입자는, 그 이유는 확실하지는 않지만, 1개의 탄화 붕소 입자가 1개의 질화 붕소의 괴상 입자(응집체)가 된다는 특이적인 질화 붕소 입자의 성장 환경에서 유래하여, 탄화 붕소 입자와는 배향 방향이 상이하도록 성장한다. 즉, 질화 붕소의 1차 입자는, 탄화 붕소 입자의 긴 방향과 직교하는 방향을 따라 성장하고, 그 결과, 극히 특이적인 구조 응집체인 괴상 입자를 생성한다. 이에 의해, 1차 입자의 배향성을 열전도성의 관점에서 양호하게 할 수 있다. 이와 같은 1차 입자가 응집하여 구성되는 괴상 입자를 포함하는 질화 붕소 분말은, 복합재 또는 방열 부재 등에 이용되었을 때에, 열전도율을 충분히 높게 할 수 있다.

- [0015] 상기 결정화 공정에서는, 1차 입자의 면내 방향이 괴상 입자의 짧은 방향과 평행 방향으로 배향하고 있어도 된다. 이에 의해, 한층 높은 열전도율을 갖는 질화 붕소 분말을 얻을 수 있다. 상기 결정화 공정에서는, 배향성 지수[I(002)/I(100)]가 6.5 이하인 질화 붕소 분말을 얻어도 된다. 이에 의해, 한층 높은 열전도율을 갖는 질화 붕소 분말을 얻을 수 있다.
- [0016] 본 개시의 일 측면에 따른 복합재는, 인편상의 1차 입자가 응집하여 구성되는 괴상 입자를 포함하는 질화 붕소 분말과, 수지를 함유하고, 배향성 지수[I(002)/I(100)]가 6.0 이하이다. 이와 같은 복합재는, 1차 입자의 배향성을 양호하게 할 수 있다. 따라서, 충분히 높은 열전도율을 갖는다.
- [0017] 복합재는, 전술한 어느 질화 붕소 분말과 수지를 함유하는 것이어도 된다. 이와 같은 복합재는, 전술한 질화 붕소 분말을 함유하기 때문에, 충분히 높은 열전도율을 갖는다.
- [0018] 본 개시의 일 측면에 따른 방열 부재는, 전술한 복합재를 갖는다. 이 때문에, 방열성을 충분히 높게 할 수 있다.

발명의 효과

- [0019] 본 개시에 의하면, 충분히 높은 열전도율을 갖는 질화 붕소 분말 및 그의 제조 방법, 및 복합재를 제공할 수 있다. 또한, 방열 특성이 충분히 우수한 방열 부재를 제공할 수 있다.

도면의 간단한 설명

- [도 1] 도 1은, 일 실시형태에 따른 질화 붕소 분말에 포함되는 괴상 입자의 단면을 모식적으로 나타내는 단면도이다.
- [도 2] 도 2는, 괴상 입자의 단면의 일례를 나타내는 주사형 전자 현미경 사진(배율: 500배)이다.
- [도 3] 도 3은, 질화 붕소 분말 및 그에 포함되는 괴상 입자의 일례를 나타내는 주사형 전자 현미경 사진(배율: 1000배)이다.
- [도 4] 도 4는, 괴상 입자에 포함되는 인편상의 1차 입자의 일례를 모식적으로 나타내는 사시도이다.
- [도 5] 도 5는, 도 2와는 다른 괴상 입자의 단면을 확대해서 나타내는 주사형 전자 현미경 사진(배율: 2000배)이다.
- [도 6] 도 6은, 일 실시형태에 따른 복합재를 모식적으로 나타내는 도면이다.
- [도 7] 도 7은, 실시예 1의 탄화 붕소 분말의 주사형 전자 현미경 사진(배율: 1000배)이다.
- [도 8] 도 8은, 실시예 1의 소성물의 주사형 전자 현미경 사진(배율: 1000배)이다.
- [도 9] 도 9는, 종래의 괴상 입자의 표면을 나타내는 주사형 전자 현미경 사진이다.
- [도 10] 도 10은, 종래의 괴상 입자의 단면을 나타내는 주사형 전자 현미경 사진이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0021] 이하, 경우에 따라 도면을 참조하여, 본 개시의 실시형태를 설명한다. 단, 이하의 실시형태는, 본 개시를 설명하기 위한 예시이며, 본 개시를 이하의 내용으로 한정하는 취지는 아니다. 설명에 있어서, 동일 요소 또는 동일 기능을 갖는 요소에는 동일 부호를 이용하고, 경우에 따라 중복되는 설명은 생략한다. 또한, 상하 좌우 등의 위치 관계는, 특별히 예고하지 않는 한, 도면에 나타내는 위치 관계에 기초하는 것으로 한다. 또, 각 요소의 치수 비율은 도시하는 비율로 한정되는 것은 아니다.
- [0022] 일 실시형태에 따른 질화 붕소 분말은, 인편상의 1차 입자가 응집하여 구성되는, 이방성을 갖는 괴상 입자를 포함한다. 도 1은, 본 실시형태의 질화 붕소 분말에 포함되는 괴상 입자의 모식도이다. 도 1에 나타내는 바와 같이, 괴상 입자(10)는, 등방성이 아니라 이방성을 갖고 있고, 인편상의 1차 입자(11)(질화 붕소 입자)가 응집하여 구성되어 있다.
- [0023] 도 2는, 질화 붕소 분말에 포함되는 괴상 입자(10)의 단면의 일례를 나타내는 주사형 전자 현미경의 사진이다. 도 2에 나타내는 바와 같이, 괴상 입자(10)에는, 서로 직교하는, 장변(L1)과 단변(L2)을 그릴 수 있다. 장변(L1)과 단변(L2)은, 이하의 수순으로 그려진다. 괴상 입자(10)의 화상에 있어서, 가장 간격이 커지는 괴상 입

자(10)의 외연 상의 2점을 선택한다. 이 2점을 잇는 선분이 장변(L1)이 된다. 또한, 이 장변(L1)과 직교하는 방향에 있어서, 가장 간격이 커지는 외연 상의 다른 2점을 선택한다. 이 2점을 잇는 선분이 단변(L2)이 된다.

[0024] 도 3은, 질화 붕소 분말에 포함되는 괴상 입자(10)의 표면을 나타내는 주사형 전자 현미경의 화상이다. 괴상 입자(10)의 장변(L1)의 길이(La)와 단변(L2)의 길이(Lb)는, 도 3에 나타내는 바와 같은 괴상 입자(10)의 표면 화상에 있어서 측정된다. La와 Lb는, La>Lb의 관계에 있다. 한편, La 및 Lb의 측정은, 도 3에 나타내는 바와 같은 관찰 화상을 화상 해석 소프트웨어(예를 들면, 주식회사 마운테크제의 「Mac-view」 등)에 도입하여 행해도 된다.

[0025] 질화 붕소 분말의 어스펙트비는, 도 3에 나타내는 바와 같은 주사형 전자 현미경의 화상에 있어서, 임의로 100 개의 괴상 입자(10)를 선택하여 각각의 괴상 입자(10)의 La/Lb의 값을 산출하고, 그들의 산술 평균치로서 구할 수 있다. 질화 붕소 분말의 열전도율을 한층 높게 하는 관점에서, 질화 붕소 분말의 어스펙트비는, 1.3~9.0이 어도 된다. 한편, 본 개시에서는, 장변(L1)에 평행한 방향, 단변(L2)에 평행한 방향을 짧은 방향이라고 한다.

[0026] 도 4는, 괴상 입자(10)에 포함되는 인편상의 1차 입자(11)의 일례를 모식적으로 나타내는 사시도이다. 본 개시에 있어서, c축 방향을 1차 입자(11)의 두께 방향으로 하고, c축 방향을 따르는 길이를 1차 입자(11)의 두께로 정의한다. 또한, c축 방향에 직교하는 a-b 평면에 평행한 방향을, 1차 입자(11)의 면내 방향으로 정의한다.

[0027] 도 1 및 도 2에 나타내는 바와 같이, 1차 입자(11)는, 그 면내 방향이 괴상 입자(10)의 짧은 방향을 따르도록 배향하고 있다. 환연하면, 1차 입자(11)는, 그 두께 방향이 괴상 입자(10)의 긴 방향을 따르도록 배향하고 있다. 이와 같이 배향하는 것에 의해, 괴상 입자(10)의 짧은 방향에 있어서의 열전도율을 충분히 높게 할 수 있다.

[0028] 도 5는, 도 2와는 다른 괴상 입자의 단면을 나타내는 주사형 전자 현미경 사진(배율: 2000배)이다. 이 사진에 있어서도, 1차 입자(11)는, 그 면내 방향이 괴상 입자(10)의 짧은 방향과 평행 방향으로 배향하고 있는 것을 알 수 있다.

[0029] 1차 입자(11)가 배향하고 있지 않은 경우, 즉 완전히 랜덤으로 무배향인 경우, 특허문현 2에 기재되는 대로, 배향성 지수[I(002)/I(100)]는, 약 6.7이다(「JCPDS[분말 X선 회절 데이터베이스]」 No. 34-0421[BN]의 결정 밀도치[Dx]). 결정성이 높은 육방정 질화 붕소에서는, 이 배향성 지수는 20보다도 커지는 것이 일반적이다.

[0030] 이에 비해, 본 실시형태의 질화 붕소 분말의 배향성 지수[I(002)/I(100)]는, 바람직하게는 6.5 이하이다. 이 배향성 지수는, 6.0 미만이어도 되고, 5.8 미만이어도 된다. 이와 같이 배향성 지수가 작을수록, 1차 입자(11)의 면내 방향이 괴상 입자(10)의 짧은 방향과 평행 방향으로 배향하는 1차 입자(11)의 비율이 높아진다. 즉, 1차 입자(11)의 면내 방향이 괴상 입자(10)의 짧은 방향과 평행 방향으로 배향하는 것에 의해, 배향성 지수가 무배향인 경우보다도 작아진다.

[0031] 이와 같은 괴상 입자(10)를 포함하는 질화 붕소 분말을 포함하는 성형 원료를 1축 프레스하면, 1축 프레스 방향과, 인편상의 1차 입자(11)의 면내 방향이 평행이 되기 쉬워져, 소정 방향(1축 프레스 방향)에 있어서의 열전도율을 충분히 높게 할 수 있다. 제조 용이성의 관점에서, 질화 붕소 분말의 배향성 지수는, 2.0 이상이어도 되고, 3.0 이상이어도 되고, 4.0 이상이어도 된다. 배향성 지수[I(002)/I(100)]는, X선 회절의 (002)면과 (100)면의 피크 강도비로서 구할 수 있다.

[0032] 본 실시형태의 질화 붕소 분말의 평균 입경은, 열전도율을 충분히 높게 하는 관점에서 $15 \mu\text{m}$ 이상이어도 되고, $20 \mu\text{m}$ 이상이어도 되고, $25 \mu\text{m}$ 이상이어도 되고, $30 \mu\text{m}$ 이상이어도 된다. 당해 평균 입경은, 시트상의 복합재 등에 적합하게 이용되도록, $200 \mu\text{m}$ 이하여도 되고, $150 \mu\text{m}$ 이하여도 되고, $100 \mu\text{m}$ 이하여도 되고, $90 \mu\text{m}$ 이하여도 되고, $80 \mu\text{m}$ 이하여도 된다.

[0033] 본 개시에 있어서의 질화 붕소 분말의 평균 입경은, 시판 중인 레이저 회절 산란법 입도 분포 측정 장치(예를 들면, 벡크만콜터사제의 LS-13 320)를 이용하여 측정할 수 있다.

[0034] 질화 붕소 분말의 어스펙트비는, 1.3~9.0이어도 된다. 이와 같은 질화 붕소 분말과 수지를 포함하는 복합재를 1축 프레스하여 성형체를 얻는 경우, 질화 붕소 분말에 포함되는 괴상 입자가, 그 짧은 방향과 프레스 방향이 평행이 되도록 배향하는 경향이 있다. 그 결과, 1차 입자가, 그 면내 방향과 짧은 방향이 평행이 되도록 배향하게 되어, 1축 프레스 방향에 있어서의 복합재(복합 시트) 또는 방열 부재의 열전도율을 충분히 높게 할 수 있다.

- [0035] 도 6은, 일 실시형태에 따른 복합재를 모식적으로 나타내는 도면이다. 도 6은, 복합재(20)를 측면으로부터 보았을 때의 복합재(20)에 포함되는 괴상 입자(10)를 투시하여 나타내는 도면이다. 복합재(20)는, 수지(22)와 수지(22) 중에 분산되는 질화 붕소 분말(50)을 포함하고, 도 6에 나타내는 화살표 방향으로 1축 프레스 되어 성형되어 있다. 수지(22)는, 경화된 것이어도 되고, 경화 전의 것이어도 된다. 복합재(20)는 시트상이어도 된다.
- [0036] 질화 붕소 분말(50)에 포함되는 괴상 입자(10)는, 이방성을 갖기 때문에, 그의 짧은 방향이, 도 6 중 화살표로 표시되는 1축 프레스 방향과 대략 평행이 된다. 이 때문에, 괴상 입자(10)를 구성하는 1차 입자(11)의 면내 방향이 프레스 방향에 평행이 되는 경향이 있다. 따라서, 복합재(20)는, 1축 프레스 방향의 열전도성이 특히 우수하다. 본 개시에 있어서의 이방성을 갖는 괴상 입자(10)란, 이와 같이 프레스 방향에 따라서 그의 향하는 쪽이 바뀌는 것과 같은 형상을 갖는 것을 말한다. 구체적으로는, 편평 형상의 것이어도 된다.
- [0037] 복합재(20)는, 수지(22)와 질화 붕소 분말(50)을 포함하는 것이고, 열전도성 수지 조성물이어도 되고, 방열 시트 등의 시트상의 것이어도 된다. 수지(22)로서는, 예를 들면 에폭시 수지, 실리콘 수지, 실리콘 고무, 아크릴 수지, 페놀 수지, 멜라민 수지, 유레아 수지, 불포화 폴리에스터, 불소 수지, 폴리아마이드(예를 들면, 폴리아미드, 폴리아마이드아미드, 폴리에터 이미드 등), 폴리에스터(예를 들면, 폴리뷰탈렌 테레프탈레이트, 폴리에틸렌 테레프탈레이트 등), 폴리페닐렌 에터, 폴리페닐렌 설파이드, 전방향족 폴리에스터, 폴리설휠, 액정 폴리머, 폴리에터 설휠, 폴리카보네이트, 말레이미드 변성 수지, ABS 수지, AAS(아크릴로나이트릴-아크릴 고무·스타이렌) 수지, AES(아크릴로나이트릴·에틸렌·프로필렌·다이엔 고무-스타이렌) 수지 등을 들 수 있다. 수지(22)는, 이들 수지 원료와 경화제의 혼합물이어도 된다.
- [0038] 전술한 수지 중, 특히 에폭시 수지(예를 들면, 나프탈렌형 에폭시 수지)는, 내열성과 구리박 회로에의 접착 강도가 우수하기 때문에, 프린트 배선판의 절연층으로서 적합하다. 또한, 실리콘 수지는 내열성, 유연성 및 히트싱크 등에의 밀착성이 우수하기 때문에 열 인터페이스재로서 적합하다.
- [0039] 복합재(20)는, 질화 붕소 분말(50)과, 전술한 수지가 되는 원료(모노머)와, 경화제를 소정의 비율로 배합하고, 열 또는 광에 의해 수지 원료를 경화시켜 얻어도 된다. 에폭시 수지를 이용하는 경우의 경화제로서는, 구체적으로는, 페놀 노볼락 수지, 산 무수물 수지, 아미노 수지, 이미다졸류를 들 수 있다. 이 중, 이미다졸류가 바람직하다. 이 경화제의 배합량은, 원료(모노머)에 대해서 0.5질량부 이상 15질량부 이하여도 되고, 1.0질량부 이상 10질량부 이하여도 된다.
- [0040] 복합재(20)에 있어서의 질화 붕소 분말의 함유량은, 30~85체적%여도 되고, 40~80체적% 이하여도 된다. 상기 함유량이 30체적% 이상인 것에 의해, 열전도율이 충분히 높아져, 충분한 방열 성능을 갖는 복합재(20)로 할 수 있다. 상기 함유량이 85체적% 이하인 것에 의해, 성형 시에 생기는 공극을 저감하여, 절연성 및 기계 강도를 한층 높게 할 수 있다. 한편, 복합재(20)는, 질화 붕소 분말 및 수지 이외의 성분을 포함하고 있어도 된다. 복합재(20) 중의 질화 붕소 분말과 수지의 합계 함유량은 80질량% 이상이어도 되고, 90질량% 이상이어도 되고, 95질량% 이상이어도 된다.
- [0041] 복합재(20)는, 열전도성이 우수하기 때문에, 예를 들면, 방열 시트 및 금속베이스 기판 등의 방열 부재로서 적합하게 이용할 수 있다. 복합재(20)는, 인편상의 1차 입자(11)가 응집하여 구성되는 괴상 입자(10)를 포함한다. 괴상 입자(10)에 있어서의 1차 입자(11)는, 그 면내 방향이 괴상 입자(10)의 짧은 방향과 평행 방향으로 배향하고 있다. 따라서, 복합재(20)의 배향성 지수[I(002)/I(100)]가 6.0 이하가 되어, 열전도성이 우수한 복합재(20)가 된다. 복합재(20)의 배향성 지수[I(002)/I(100)]는, 열전도성을 한층 향상시키는 관점에서, 5.5 미만이어도 되고, 5.0 이하여도 된다. 배향성 지수[I(002)/I(100)]는, 질화 붕소 분말과 마찬가지로, X선 회절의 (002)면과 (100)면의 피크 강도비로서 구할 수 있다.
- [0042] 일 실시형태에 따른 질화 붕소 분말의 제조 방법은, 탄화 붕소 분말을, 질소 가압 분위기하에서 소성하여 소성물을 얻는 질화 공정과, 당해 소성물과 붕소원을 포함하는 배합물을 가열하여 인편상인 질화 붕소의 1차 입자를 생성하고, 1차 입자가 응집하여 구성되는 괴상 입자를 포함하는 질화 붕소 분말을 얻는 결정화 공정을 갖는다. 이 제조 방법에 의해, 전술한 특성을 갖는 질화 붕소 분말을 얻을 수 있다.
- [0043] 탄화 붕소 분말은, 어스펙트비가 1.5~10인 것을 이용한다. 이 어스펙트비는, 복합 재료의 두께 방향에 있어서의 열전도율을 높게 하는 관점에서, 1.7 이상이어도 되고, 1.8 이상이어도 된다. 한편, 상기 어스펙트비는, 열전도율의 이방성을 낮게 하는 관점에서, 9 이하여도 되고, 8 이하여도 된다. 이 어스펙트비는, 전술한 질화 붕소 분말의 어스펙트비를 구하는 방법과 동일한 방법에 의해 구할 수 있다.
- [0044] 탄화 붕소 분말은, 예를 들면, 이하의 수순으로 조제할 수 있다. 봉산과 아세틸렌 블랙을 혼합한 후, 불활성

가스 분위기 중, 1800~2400°C에서, 1~10시간 가열하여, 탄화 봉소괴(塊)를 얻는다. 이 탄화 봉소괴를 분쇄 후, 체분리하고, 세정, 불순물 제거, 건조 등을 적절히 행하여, 탄화 봉소 분말을 조제할 수 있다. 여기에서, 전술한 어스펙트비를 갖는 탄화 봉소 분말은, 예를 들면, 비교적 마일드한 조건에서 분쇄를 행한 후, 진동체에 의한 분급과 기류 분급을 조합하여 행하는 것에 의해 얻을 수 있다. 구체적으로는, 진동체로 소정 사이즈 이상의 입자를 배제하고, 기류 분급으로 소정 사이즈 이하의 입자를 배제하는 것에 의해 얻어도 된다. 이때에 발생하는 조분(粗粉)측의 입자는 재차 분쇄, 분급을 행하는 것에 의해 재이용하여, 전술한 어스펙트비를 갖는 탄화 봉소 분말을 얻어도 된다.

[0045] 질화 공정에서는, 탄화 봉소 분말을, 질소 가압 분위기하에서 소성하여 탄질화 봉소(B_4CN_4)를 포함하는 소성물을 얻는다. 질화 공정에 있어서의 소성 온도는, 1800°C 이상이어도 되고, 1900°C 이상이어도 된다. 또한, 당해 소성 온도는, 2400°C 이하여도 되고, 2200°C 이하여도 된다. 당해 소성 온도는, 예를 들면, 1800~2400°C여도 된다.

[0046] 질화 공정에 있어서의 압력은, 0.6MPa 이상이어도 되고, 0.7MPa 이상이어도 된다. 또한 당해 압력은, 1.0MPa 이하여도 되고, 0.9MPa 이하여도 된다. 당해 압력은, 예를 들면, 0.6~1.0MPa이어도 된다. 당해 압력이 지나치게 낮으면, 탄화 봉소의 질화가 진행되기 어려워지는 경향이 있다. 한편, 당해 압력이 지나치게 높으면, 제조 비용이 상승하는 경향이 있다.

[0047] 질화 공정에 있어서의 질소 가압 분위기의 질소 가스 농도는 95체적% 이상이어도 되고, 99.9체적% 이상이어도 된다. 질화 공정에 있어서의 소성 시간은, 질화가 충분히 진행되는 범위이면 특별히 한정되지 않고, 예를 들면 6~30시간이어도 되고, 8~20시간이어도 된다.

[0048] 결정화 공정에서는, 질화 공정에서 얻어진 탄질화 봉소를 포함하는 소성물과 봉소원을 포함하는 배합물을 가열하여, 인편상인 질화 봉소의 1차 입자를 생성하고, 1차 입자가 응집하여 구성되는 괴상 입자를 포함하는 질화 봉소 분말을 얻는다. 즉, 결정화 공정에서는, 탄질화 봉소를 탈탄화시킴과 함께, 소정의 크기의 인편상의 1차 입자를 생성시키면서, 이들을 응집시켜 괴상 입자를 포함하는 질화 봉소 분말을 얻는다.

[0049] 봉소원으로서는, 봉산, 산화 봉소, 또는 이들의 혼합물을 들 수 있다. 결정화 공정에서 가열하는 배합물은, 공지의 첨가물을 함유해도 된다.

[0050] 배합물에 있어서, 탄질화 봉소와 봉소원의 배합 비율은, 몰비에 따라서 적절히 설정 가능하다. 봉소원으로서 봉산 또는 산화 봉소를 이용하는 경우에는, 예를 들면, 탄질화 봉소 100질량부에 대해서 봉산 또는 산화 봉소를 100~300질량부 배합해도 되고, 봉산 또는 산화 봉소를 150~250질량부 배합해도 된다.

[0051] 결정화 공정에 있어서 배합물을 가열하는 가열 온도는, 예를 들면 1800°C 이상이어도 되고, 2000°C 이상이어도 된다. 당해 가열 온도는, 예를 들면 2200°C 이하여도 되고, 2100°C 이하여도 된다. 가열 온도가 지나치게 낮으면, 입성장이 충분히 진행되지 않는 경향이 있다. 결정화 공정은, 상압(대기압)의 분위기하에서 가열해도 되고, 가압하여 대기압을 초과하는 압력에서 가열해도 된다. 가압하는 경우에는, 예를 들면 0.5MPa 이하여도 되고, 0.3MPa 이하여도 된다.

[0052] 결정화 공정에 있어서의 가열 시간은, 0.5시간 이상이어도 되고, 1시간 이상, 3시간 이상, 5시간 이상, 또는 10시간 이상이어도 된다. 당해 가열 시간은, 40시간 이하여도 되고, 30시간 이하, 또는 20시간 이하여도 된다. 당해 가열 시간은, 예를 들면, 0.5~40시간이어도 되고, 1~30시간이어도 된다. 가열 시간이 지나치게 짧으면 입성장이 충분히 진행되지 않는 경향이 있다. 한편, 가열 시간이 지나치게 길면 공업적으로 불리해지는 경향이 있다.

[0053] 이상의 공정에 의해, 질화 봉소 분말을 얻을 수 있다. 결정화 공정 후에, 분쇄 공정을 행해도 된다. 분쇄 공정에 있어서는, 일반적인 분쇄기 또는 해쇄기를 이용할 수 있다. 예를 들면, 볼 밀, 진동 밀, 제트 밀 등을 이용할 수 있다. 한편, 본 개시에 있어서는, 「분쇄」에는 「해쇄」도 포함된다. 분쇄 및 분급에 의해, 질화 봉소 분말의 평균 입경을 15~200 μm 로 조제해도 된다.

[0054] 상기 제조 방법에서는, 소정의 어스펙트비를 갖는 탄화 봉소 분말을 이용하고 있다. 얻어지는 질화 봉소 분말에 포함되는 괴상 입자의 형상은, 탄화 봉소 분말의 형상에서 유래한다. 따라서, 상기 제조 방법으로 얻어지는 질화 봉소 분말에 포함되는 괴상 입자는, 이방성을 갖는다. 이 괴상 입자는, 인편상의 1차 입자가 응집하여 구성된다. 당해 1차 입자가 높은 배향성을 갖기 때문에, 괴상 입자를 함유하는 질화 봉소 분말은, 열전도성이 우수하다. 질화 봉소의 1차 입자는, 그 면내 방향이 괴상 입자의 짧은 방향과 평행 방향으로 배향하고 있어도 된

다. 질화 봉소 분말은, 전술한 배향성 지수를 만족하는 것이어야 된다.

[0055] 이상, 몇 가지의 실시형태를 설명했지만, 본 개시는 상기 실시형태로 전혀 한정되는 것은 아니다.

실시예

[0057] 실시예 및 비교예를 참조하여 본 개시의 내용을 보다 상세하게 설명하지만, 본 발명은 하기의 실시예로 한정되는 것은 아니다.

[0058] <탄화 봉소 분말의 조제>

[0059] (실시예 1)

[0060] 신닛폰 텐코 주식회사제의 오쏘 봉산 100질량부와, 텐카 주식회사제의 아세틸렌 블랙(상품명: HS100) 35질량부를 헨셀 믹서를 이용하여 혼합했다. 얻어진 혼합물을, 흑연제의 도가니 중에 충전하고, 아크로(爐)에서, 아르곤 분위기로, 2200°C에서 5시간 가열하여, 괴상의 탄화 봉소(B_4C)를 얻었다. 얻어진 괴상물을, 조 크러셔로 조분쇄하여 조분을 얻었다. 이 조분을, 탄화 규소제의 볼($\phi 10mm$)을 갖는 볼 밀에 의해 더 분쇄하여 분쇄분을 얻었다. 볼 밀에 의한 분쇄는, 회전수 20rpm으로 60분간 행했다. 그 후, 눈 크기 $45\mu m$ 의 진동체를 이용하여 분쇄분을 분급했다. 체 상의 미분을, 클라시엘 분급기로 기류 분급을 행하여, $10\mu m$ 이상의 입경을 갖는 탄화 봉소 분말을 얻었다. 이와 같이 해서, 어스펙트비가 2.5, 평균 입경이 $30\mu m$ 인 탄화 봉소 분말을 얻었다(각각의 측정 방법은 후술한다.). 얻어진 탄화 봉소 분말의 탄소량은 19.9질량%였다. 탄소량은, 탄소/황 동시 분석계로 측정했다.

[0061] 도 7은, 얻어진 탄화 봉소 분말을 나타내는 주사형 전자 현미경 사진(배율: 1000배)이다.

[0062] 조제한 탄화 봉소 분말을, 질화 봉소제의 도가니에 충전했다. 그 후, 저항 가열로를 이용하여, 질소 가스 분위기하에서, 2000°C, 0.85MPa의 조건에서 10시간 가열했다. 이와 같이 해서 탄질화 봉소(B_4CN_4)를 포함하는 소성물을 얻었다.

[0063] 도 8은, 소성물의 주사형 전자 현미경 사진(배율: 1000배)이다. 도 8에 나타나는 바와 같이, 소성물은, 탄화 봉소 분말의 형상에서 유래하는 형상을 갖는 것이 확인되었다.

[0064] 소성물과 봉산을, 탄질화 봉소 100질량부에 대해서 봉산이 100질량부가 되는 비율로 배합하고, 헨셀 믹서를 이용하여 혼합했다. 얻어진 혼합물을, 질화 봉소제의 도가니에 충전하고, 저항 가열로를 이용하여 0.2MPa의 압력 조건에서, 질소 가스 분위기하, 실온으로부터 1000°C까지 승온 속도 10°C/분으로 승온했다. 계속해서, 1000°C로부터 승온 속도 2°C/분으로 2000°C까지 승온했다. 2000°C에서, 6시간 유지하여 가열하는 것에 의해, 1차 입자가 응집하여 구성되는 괴상 입자를 포함하는 질화 봉소를 얻었다.

[0065] 도 3은, 실시예 1에서 얻어진 질화 봉소 분말의 주사형 전자 현미경 사진(배율: 1000배)이다. 도 3에 나타나는 바와 같이, 질화 봉소 분말은, 탄화 봉소 분말의 형상에서 유래하는 형상을 갖는 것이 확인되었다.

[0066] 얻어진 괴상 질화 봉소를, 헨셀 믹서를 이용하여 해체했다. 그 후, 체눈 $90\mu m$ 의 나일론체로 분급을 행하여, 질화 봉소 분말을 얻었다.

[0067] <분말의 평가>

[0068] X선 회절 장치(리가쿠사제, 상품명: ULTIMA-IV)를 이용하여, 이하의 수순으로 질화 봉소 분말의 배향성 지수 [$I(002)/I(100)$]를 구했다. X선 회절 장치에 부속되어 있는 깊이 0.2mm의 오목부를 갖는 유리 셀의 오목부에 질화 봉소 분말을 충전했다. 분말 시료의 성형기(주식회사 아메나테크제, 상품명: PX700)를 이용하여, 오목부에 충전한 시료를 설정 압력 M에서 굳힘으로써 측정 시료를 작성했다.

[0069] 성형기에서 굳힌 충전물의 표면이 평활해져 있지 않은 경우는 수동으로 평활하게 해서 측정 시료로 했다. 측정 시료에 X선을 조사하여, 베이스라인 보정을 행한 후의 질화 봉소의 (002)면과 (100)면의 피크 강도비를 산출하고, 이것을 배향성 지수 [$I(002)/I(100)$]로 했다. 결과는, 표 1에 나타내는 대로였다.

[0070] 질화 봉소 분말의 평균 입경은, ISO 13320:2009에 준거하여, 벡크만쿨터사제의 레이저 회절 산란법 입도 분포 측정 장치(장치명: LS-13 320)를 이용하여 측정했다. 측정은, 질화 봉소 분말을 호모지나이저에 가하지 않고서 측정했다. 이 평균 입경은, 누적 입도 분포의 누적치 50%의 입경(메디안 입경, d50)이다. 입도 분포 측정에 있어서, 해당 응집체를 분산시키는 용매에는 물을, 분산제에는 헥사메타인산을 이용했다. 이때 물의 굴절률에는 1.33을, 또한 질화 봉소 분말의 굴절률에 대해서는 1.80의 수치를 이용했다. 탄화 봉소 분말의 입경도 동일

한 방법으로 측정했다. 측정 결과는, 표 1에 나타내는 대로였다.

[0071] 질화 봉소 분말 및 탄화 봉소 분말의 어스펙트비는, 이하의 수순으로 구했다. 우선, 질화 봉소 분말의 주사형 전자 현미경 관찰(배율: 200~2000배)을 행했다. 도 3에 나타내는 바와 같이, 괴상 입자의 표면에 있어서, 가장 간격이 커지는 외연 상의 2점을 선택했다. 이 2점을 잇는 선분을 장변(L1)으로 했다. 또한, 이 장변(L1)과 직교하는 방향에 있어서, 가장 간격이 커지는 외연 상의 다른 2점을 선택했다. 이 2점을 잇는 선분을 단변(L2)으로 했다. 이와 같이 해서 그런 장변(L1) 및 단변(L2)의 길이(La 및 Lb)를 구했다.

[0072] 도 3에 나타내는 바와 같은 주사형 전자 현미경의 화상에 있어서, 임의로 100개의 괴상 입자를 선택하여 각각의 괴상 입자의 La/Lb의 값을 산출하고, 그들의 산술 평균치를 구했다. 구한 산술 평균치는, 표 1의 「어스펙트비」의 난에 나타내는 대로였다.

[0073] 탄화 봉소 분말의 어스펙트비도 질화 봉소 분말과 동일한 방법으로 구했다. 결과는, 표 1에 나타내는 대로였다.

[0074] (실시예 2)

[0075] 탄화 봉소 분말의 조제 시의 볼 밀에 의한 분쇄 시간을 40분간으로 한 것, 눈 크기 $38\text{ }\mu\text{m}$ 의 진동체를 이용하여 분쇄분을 분급한 것, 및 클라시엘 분급기의 기류 분급으로 $18\text{ }\mu\text{m}$ 이상의 입경을 갖는 탄화 봉소 분말을 얻은 것 이외는, 실시예 1과 마찬가지로 해서 탄화 봉소 분말을 얻었다. 그리고, 실시예 1과 마찬가지로 해서 분말의 평가를 행했다. 결과는, 표 1에 나타내는 대로였다.

[0076] (실시예 3)

[0077] 탄화 봉소 분말의 조제 시의 볼 밀에 의한 분쇄 시간을 50분간으로 한 것, 눈 크기 $45\text{ }\mu\text{m}$ 의 진동체를 이용하여 분쇄분을 분급한 것, 및 클라시엘 분급기의 기류 분급으로 $15\text{ }\mu\text{m}$ 이상의 입경을 갖는 탄화 봉소 분말을 얻은 것 이외는, 실시예 1과 마찬가지로 해서 탄화 봉소 분말을 얻었다. 그리고, 실시예 1과 마찬가지로 해서 분말의 평가를 행했다. 결과는, 표 1에 나타내는 대로였다.

[0078] (실시예 4)

[0079] 탄화 봉소 분말의 조제 시의 볼 밀에 의한 분쇄 시간을 70분간으로 한 것, 눈 크기 $53\text{ }\mu\text{m}$ 의 진동체를 이용하여 분쇄분을 분급한 것, 및 클라시엘 분급기의 기류 분급으로 $8\text{ }\mu\text{m}$ 이상의 입경을 갖는 탄화 봉소 분말을 얻은 것 이외는, 실시예 1과 마찬가지로 해서 탄화 봉소 분말을 얻었다. 그리고, 실시예 1과 마찬가지로 해서 분말의 평가를 행했다. 결과는, 표 1에 나타내는 대로였다.

[0080] (실시예 5)

[0081] 탄화 봉소 분말의 조제 시의 볼 밀에 의한 분쇄 시간을 120분간으로 한 것, 눈 크기 $25\text{ }\mu\text{m}$ 의 진동체를 이용하여 분쇄분을 분급한 것, 및 클라시엘 분급기의 기류 분급으로 $5\text{ }\mu\text{m}$ 이상의 입경을 갖는 탄화 봉소 분말을 얻은 것 이외는, 실시예 1과 마찬가지로 해서 탄화 봉소 분말을 얻었다. 그리고, 실시예 1과 마찬가지로 해서 분말의 평가를 행했다. 결과는, 표 1에 나타내는 대로였다.

[0082] (실시예 6)

[0083] 탄화 봉소 분말의 조제 시의 볼 밀에 의한 분쇄 시간을 30분간으로 한 것, 눈 크기 $63\text{ }\mu\text{m}$ 의 진동체를 이용하여 분쇄분을 분급한 것, 및 클라시엘 분급기의 기류 분급으로 $25\text{ }\mu\text{m}$ 이상의 입경을 갖는 탄화 봉소 분말을 얻은 것 이외는, 실시예 1과 마찬가지로 해서 탄화 봉소 분말을 얻었다. 그리고, 실시예 1과 마찬가지로 해서 분말의 평가를 행했다. 결과는, 표 1에 나타내는 대로였다.

[0084] (실시예 7)

[0085] 탄화 봉소 분말의 조제 시의 볼 밀에 의한 분쇄 시간을 25분간으로 한 것, 눈 크기 $75\text{ }\mu\text{m}$ 의 진동체를 이용하여 분쇄분을 분급한 것, 및 클라시엘 분급기의 기류 분급으로 $35\text{ }\mu\text{m}$ 이상의 입경을 갖는 탄화 봉소 분말을 얻은 것 이외는, 실시예 1과 마찬가지로 해서 탄화 봉소 분말을 얻었다. 그리고, 실시예 1과 마찬가지로 해서 분말의 평가를 행했다. 결과는, 표 1에 나타내는 대로였다.

[0086] (비교예 1)

[0087] 탄화 봉소 분말의 조제 시의 볼 밀에 있어서의 회전수를 80rpm으로 하고 분쇄 시간을 90분간으로 한 것, 눈 크기 $75\text{ }\mu\text{m}$ 의 진동체를 이용하여 분쇄분을 분급한 것, 및 클라시엘 분급기에 의한 분급을 행하지 않은 것 이외는,

실시예 1과 마찬가지로 해서 탄화 붕소 분말의 조제를 얻었다. 그리고, 실시예 1과 마찬가지로 해서 분말의 평가를 행했다. 결과는, 표 1에 나타내는 대로였다.

[0088] (비)교예 2)

[0089] 시판 중인 스프레이 드라이법에 의한 조립(造粒) 공정에 의해, 도 9 및 도 10에 나타내는 바와 같은 구상의 입자가 응집한 질화 붕소 분말을 조제했다. 이 질화 붕소 분말을, 실시예 1과 마찬가지로 해서 평가했다. 결과는, 표 1에 나타내는 대로였다.

[0090] 비교예는 모두, 1차 입자의 면내 방향이 괴상 입자의 짧은 방향과 평행 방향으로 배향하고 있는 질화 붕소 분말은 아니었다. 한편, 실시예 1~7의 질화 붕소 분말에 포함되는 괴상 입자를 구성하는 1차 입자의 면내 방향은, 도 1에 나타내는 바와 같이, 괴상 입자의 짧은 방향과 평행 방향으로 배향하고 있었다.

표 1

	탄화 붕소 분말		질화 붕소 분말		
	평균 입경 [μm]	어스펙트비	배향성 지수	평균 입경 [μm]	어스펙트비
실시예 1	30	2.5	5.5	50	2.0
실시예 2	30	8.0	3.8	50	6.0
실시예 3	30	4.4	4.5	50	3.8
실시예 4	30	1.8	6.3	50	1.4
실시예 5	10	3.9	4.5	18	3.4
실시예 6	50	4.0	4.5	70	3.5
실시예 7	60	4.0	4.5	90	3.5
비교예 1	30	1.3	7.0	50	1.1
비교예 2	-	-	8.0	50	1.0

[0091]

[0092] <방열 시트(복합재)의 제작>

[0093] 얻어진 질화 붕소 분말의 수지에의 충전재로서의 특성의 평가를 행했다. 나프탈렌형 에폭시 수지(DIC 주식회사제, 상품명 HP4032) 100질량부와 경화제로서 이미다졸류(시코쿠 화성공업 주식회사제, 상품명 2E4MZ-CN) 10질량부의 혼합물을 준비했다. 이 혼합물을 100체적부에 대해, 질화 붕소 분말을 50체적부의 비율로 혼합했다. 혼합물을, PET제 시트 상에 두께가 0.3mm가 되도록 도포한 후, 500Pa의 감압 탈포를 10분간 행했다. 그 후, 150°C로 가열하면서, 압력 160kg/cm^2 의 조건에서 1축 프레스를 60분간 행하여, 두께 0.5mm의 방열 시트(복합재)를 얻었다.

[0094] <방열 시트의 평가>

[0095] 방열 시트의 1축 프레스 방향에 있어서의 열전도율을 열전도율(H : 단위 $\text{W}/(\text{m} \cdot \text{K})$)을, 열확산율(A : 단위 m^2/sec), 밀도(B : 단위 kg/m^3), 및 비열 용량(C : 단위 $\text{J}/(\text{kg} \cdot \text{K})$)을 이용하여, $H=A \times B \times C$ 의 계산식으로 산출했다. 열확산율은, 시트를, 세로×가로×두께=10mm×10mm×0.3mm의 사이즈로 가공한 시료를 이용하여, 레이저 플래시법에 의해 측정했다. 측정 장치는 제논 플래시 애널라이저(NETZSCH사제, 상품명: LFA447NanoFlash)를 이용했다. 밀도는 아르키메데스법에 의해 측정했다. 비열 용량은, 시차 주사 열량계(리가쿠사제, 장치명: ThermoPlusEvo DSC8230)를 이용하여 측정했다. 측정 결과는, 표 2에 나타내는 대로였다. 한편, 열전도율($\text{W}/(\text{m} \cdot \text{K})$)을 상대치로서 기재하고, 비교예 1을 1.0으로 했다.

[0096] X선 회절 장치(리가쿠사제, 상품명: ULTIMA-IV)를 이용하여, 질화 붕소 분말과 마찬가지의 수순으로 방열 시트의 배향성 지수 [$I(002)/I(100)$]를 구했다. 방열 시트를 측정 시료로서 X선 회절 장치의 시료 홀더에 세팅하고 분석을 행했다. 측정 시료에 X선을 조사하여, 베이스라인 보정을 행한 후의 질화 붕소의 (002)면과 (100)면의 피크 강도비를 산출하고, 이것을 배향성 지수 [$I(002)/I(100)$]로 했다. 결과는, 표 2에 나타내는 대로였다.

표 2

	방열 시트(복합재)	
	열전도율 상대치	배향성 지수
실시예 1	1.4	5.0
실시예 2	1.5	3.3
실시예 3	1.5	4.0
실시예 4	1.3	5.4
실시예 5	1.3	4.0
실시예 6	1.5	4.5
실시예 7	1.6	4.2
비교예 1	1.0	6.9
비교예 2	0.7	20

[0097]

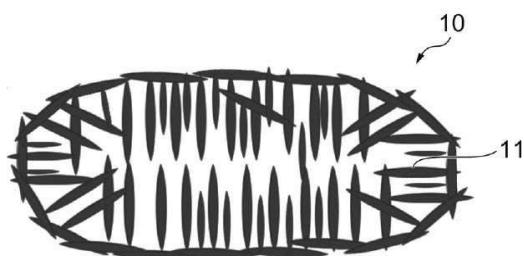
부호의 설명

[0098]

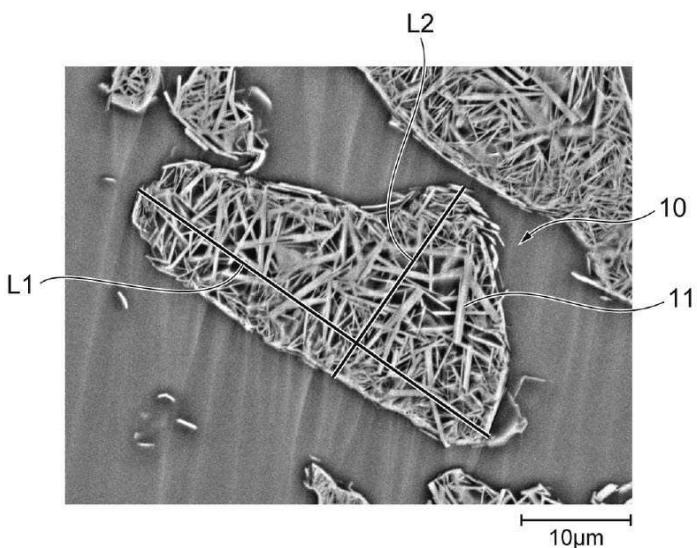
10…괴상 입자, 11…1차 입자, 20…복합재, 22…수지, 50…질화 붕소 분말.

도면

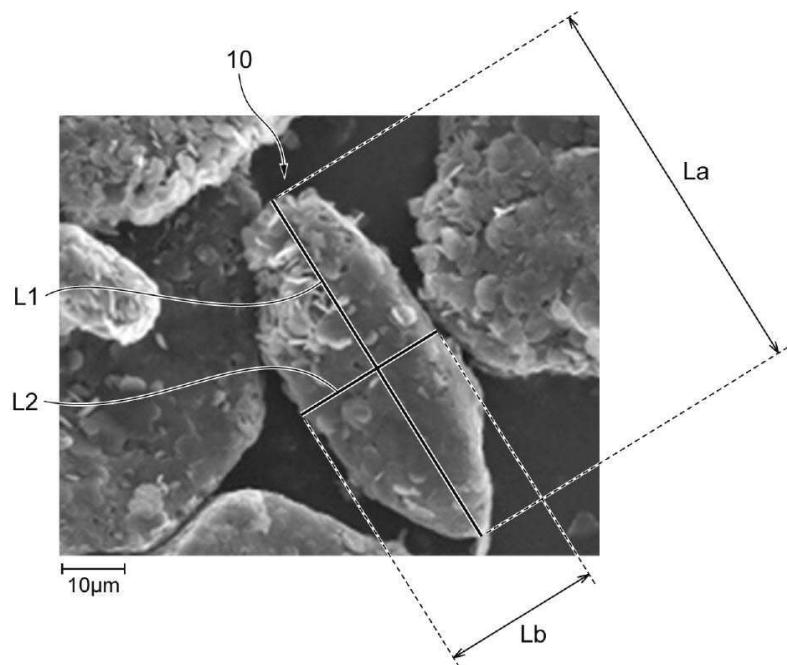
도면1



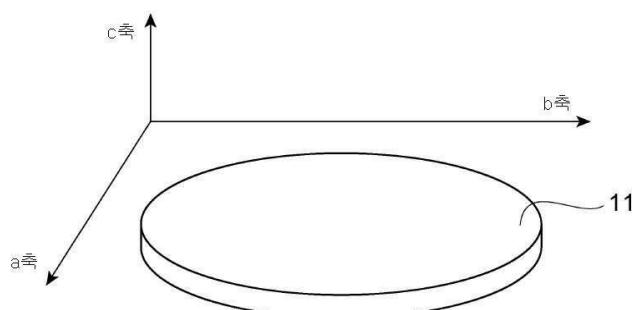
도면2



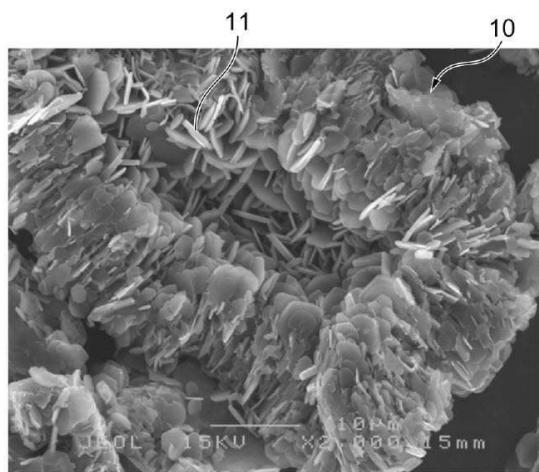
도면3



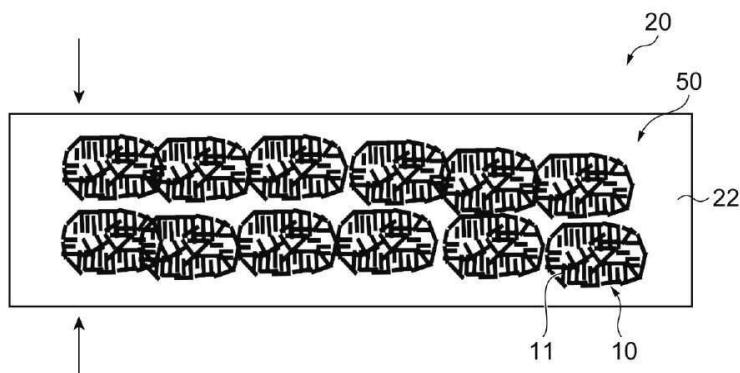
도면4



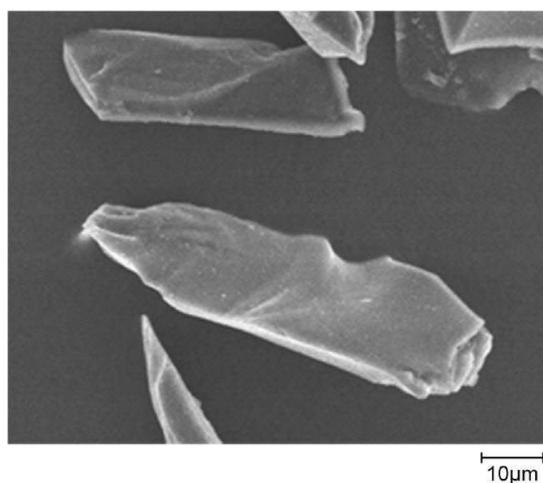
도면5



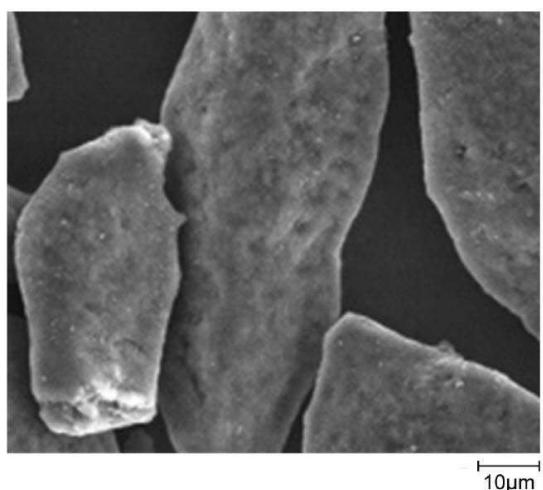
도면6



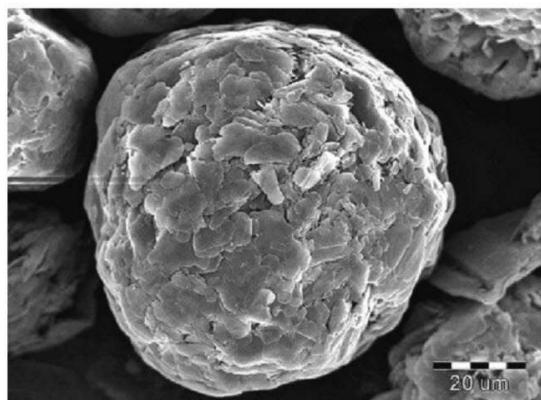
도면7



도면8



도면9



도면10

