



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公告本

(11)證書號數：TW I687393 B

(45)公告日：中華民國 109 (2020) 年 03 月 11 日

(21)申請案號：104103996

(22)申請日：中華民國 104 (2015) 年 02 月 05 日

(51)Int. Cl. : C04B35/583 (2006.01)

C04B35/622 (2006.01)

(30)優先權：2014/02/05 日本

2014-020423

2014/02/05 日本

2014-020424

2014/10/08 日本

2014-207522

2014/12/22 日本

2014-259221

2015/01/14 日本

2015-005424

2015/01/14 日本

2015-005428

(71)申請人：日商三菱化學股份有限公司 (日本) MITSUBISHI CHEMICAL CORPORATION
(JP)

日本

(72)發明人：池宮桂 IKEMIYA, KATSURA (JP)；山崎正典 YAMAZAKI, MASANORI (JP)；鈴木拓也 SUZUKI, TAKUYA (JP)；武田一樹 TAKEDA, KAZUKI (JP)；澤村敏行 SAWAMURA, TOSHIYUKI (JP)；平松沙和 HIRAMATSU, SAWA (JP)；五十島健史 ISOJIMA, KENJI (JP)

(74)代理人：賴經臣；宿希成

(56)參考文獻：

TW 201331124A1

JP 11-60216A

JP 3461651B2

JP 5036696B2

Momentive 公司型錄「Condensed Product Bulletin: PolarTherm* Boron Nitride Power PTX25 and PTX60」(2012 年公開)

審查人員：李明達

申請專利範圍項數：13 項 圖式數：6 共 70 頁

(54)名稱

氮化硼凝集粒子、氮化硼凝集粒子之製造方法、含有該氮化硼凝集粒子之樹脂組成物、成形體及片材

(57)摘要

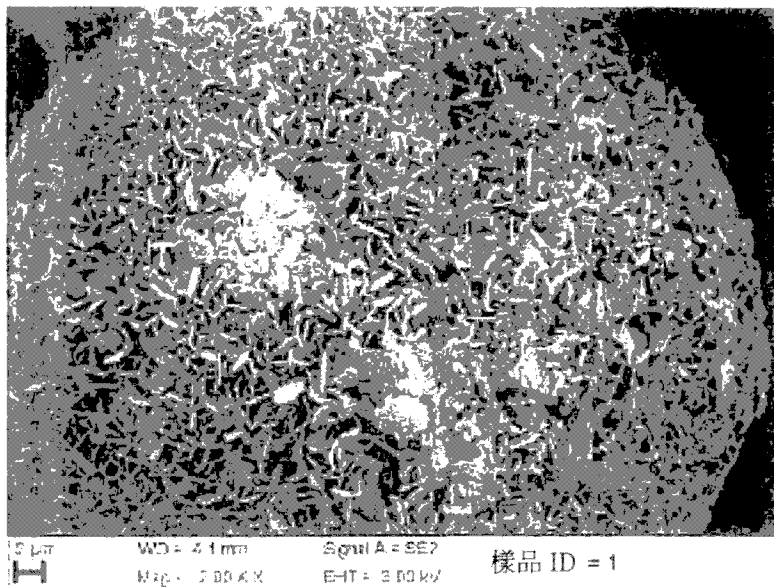
本發明之課題在於提供一種適合作為功率半導體裝置之散熱片材之熱傳導性填料且熱傳導之等向性、耐崩解性、與樹脂之混練性優異的氮化硼凝集粒子。藉由如下 BN 凝集粒子可解決上述課題，該 BN 凝集粒子係氮化硼一次粒子(以下稱為「BN 一次粒子」)凝集而成之氮化硼凝集粒子(以下稱為「BN 凝集粒子」)，其特徵在於：對利用 10mm ϕ 之粉末錠劑成形機於 0.85ton/cm² 之成型壓力下成型所獲得之顆粒狀試樣進行粉末 X 射線繞射測定，所測得之 BN 一次粒子之(100)面與(004)面之峰面積強度比((100)/(004))為 0.25 以上，且將該 BN 凝集粒子以表面成為平滑之方式填充於深度 0.2mm 之玻璃試樣板後進行粉末 X 射線繞射測定，由所測得之 BN 一次粒子之(002)面峰值所求出之 BN 一次粒子之平均微晶粒徑為 375Å 以上。

The present invention provides agglomerated boron nitride particles excellent in isotropy of thermal conductivity, disintegration resistance and kneading property with a resin, and the agglomerated boron nitride particle is preferably used as a thermal conductive filler included in a heat releasing sheet of power semiconductor devices.

The agglomerated boron nitride particles are formed by agglomerating boron nitride primary particles, wherein a peak area intensity ratio of (100) plane and (004) plane of the boron nitride primary particles, which are obtained by a powder X-ray diffraction of pellet-shaped sample formed by the boron nitride primary particles at a forming pressure of 0.85 ton/cm^2 with a powder tablet forming apparatus with 10 mm ϕ , is 0.25 or more, and an average crystalline diameter of the boron nitride primary particles, calculated from the peak of (002) plane of the boron nitride primary particles obtained by a powder X-ray diffraction of a glass plate having a 0.2mm depth cove filled with the boron nitride primary particles so as to smooth the surface, is 375 Å or more.

指定代表圖：

圖 1



發明專利說明書

(本說明書格式、順序，請勿任意更動)

【發明名稱】(中文/英文)

氮化硼凝集粒子、氮化硼凝集粒子之製造方法、含有該氮化硼凝集粒子之樹脂組成物、成形體及片材

AGGLOMERATED BORON NITRIDE PARTICLES, A METHOD FOR PRODUCING AGGLOMERATED BORON NITRIDE PARTICLES, A RESIN COMPOSITION INCLUDING THE AGGLOMERATED BORON NITRIDE PARTICLES, MOLDING, AND SHEET

【技術領域】

【0001】 本發明係關於一種氮化硼凝集粒子(以下稱為「BN 凝集粒子」)、該粒子之製造方法，詳細而言，係關於一種氮化硼一次粒子(以下稱為「BN 一次粒子」)凝集而成之 BN 凝集粒子及其製造方法。又，本發明係關於一種含有該 BN 凝集粒子之含 BN 凝集粒子之樹脂組成物、及使該含 BN 凝集粒子之樹脂組成物成形而成之成形體。又，本發明係關於一種以特定狀態包含特定 BN 一次粒子之片材。

【先前技術】

【0002】 氮化硼(以下稱為「BN」)為絕緣性陶瓷，已知具有金剛石構造之 c-BN、具有石墨構造之 h-BN、具有亂層構造之 α -BN、 β -BN 等各種結晶型。該等之中，h-BN 具備具有與石墨相同之層狀構造、合成相對容易且熱傳導性、固體潤滑性、化學穩定性、耐熱性優異的特徵，因此被廣泛用於電氣・電子材料領域。

【0003】 近年來，尤其於電氣・電子領域，伴隨積體電路高密度化所產生之發熱成為較大問題，如何進行散熱成為緊迫的課題。h-BN 儘管為絕緣性，但靈活運用其具有高熱傳導性之特徵，作為上述散熱構件用熱傳導性填料而受到關注。

【0004】 然而，h-BN 粒子形狀呈板狀，於其板面方向(ab 面內或

(002)面內)表現出較高熱傳導性(通常作為熱傳導率為 400 W/mK 左右)，但於板厚方向(C 軸方向)則僅表現出較低熱傳導性(通常作為熱傳導率為 2~3 W/mK 左右)，因此於將其調配於樹脂中而製成含 BN 粒子之樹脂組成物，例如成形為板狀成形體之情形時，板狀 h-BN 於屬於成形時含 BN 粒子之樹脂組成物之流動方向的成形體之板面方向上發生配向，所獲得之成形體存在於板面方向上熱傳導率優異但於厚度方向上僅表現出低熱傳導率之問題。

【0005】 因此，為了改良上述 h-BN 之熱傳導性之異向性，業界一直以來對即便於成形為成形體之情形時如上所述之配向亦較小，且具有鱗片狀以外之形狀的由 h-BN 凝集而成之凝集粒子進行研究。作為上述 h-BN 凝集粒子，有藉由噴霧乾燥等進行造粒而成之 h-BN 凝集粒子、對 h-BN 進行燒結後粉碎燒結體而製造之 h-BN 凝集粒子等(專利文獻 1、2)。又，亦提出有由硼酸與三聚氰胺之混合物所製造，且一次粒子於未發生配向之狀態下凝集而成的松毬狀 h-BN 凝集粒子(專利文獻 3)。

【0006】 換言之，關於習知之 h-BN 凝集粒子，一直以來研究藉由製作較大之凝集粒子而減小凝集粒子間之接觸阻力。又，一直以來使用數 μm 至數百 μm 左右之粒徑相對較大且結晶性較高之 h-BN 一次粒子，以藉由減少構成 h-BN 凝集粒子之 h-BN 一次粒子間之粒界而達成高熱傳導性(專利文獻 1、2、3)。

【0007】 作為上述習知之 BN 凝集粒子之用途，已知有用於功率半導體裝置等中所需之散熱片材，但現狀是為了減小 BN 凝集粒子間之接觸阻力，必須於一定壓力下進行成形，因此該壓力導致 BN 凝集粒子發生崩解，一次粒子於成形面方向發生配向，結果於成形面垂直方向之熱傳導較低，未達到實用水平。即，期望即便於一定壓力下亦

可於散熱片材垂直方向上賦予較高熱傳導性之 BN 凝集粒子，進而期望開發 BN 凝集粒子本身具有較高熱傳導性之凝集粒子。

【0008】 又，專利文獻 4 中記載有比表面積為 $10 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上、總細孔體積為 $2.15 \text{ cm}^3/\text{g}$ 以下、且該氮化硼凝集粒子之表面係由平均粒徑 $0.05 \text{ }\mu\text{m}$ 以上且 $1 \text{ }\mu\text{m}$ 以下之氮化硼一次粒子構成的氮化硼凝集粒子，揭示有具有卡屋構造(card-house structure)之 h-BN 凝集粒子。專利文獻 4 中記載之氮化硼凝集粒子雖耐崩解性提高，但凝集粒子之粒徑較小，又，於相對熱傳導或耐電壓方面要求進一步之改善。

【0009】 又，除如上所述般提高 BN 凝集粒子作為粒子之性能以外，例如於專利文獻 5 中揭示有以特定比例含有一次粒子之平均長徑不同之兩種二次凝集體，結果含有較大二次凝集體與較小二次凝集體之無機填充材的組成物。又，於專利文獻 6 中揭示有扁平狀填充劑與粒子狀填充劑之組成物。然而，現狀是專利文獻 5 或 6 中之粒子本身強度不足，熱傳導或耐電壓尚未達到實用水平。

【0010】 作為上述習知之 BN 凝集粒子之用途，周知的是用於功率半導體裝置等中所需之散熱片材，應用含有 BN 凝集粒子之組成物或使用該組成物所獲得之成形體。就上述用途之方面而言，期望上述組成物或成形體具有較高熱傳導度，且具有較高耐電壓性能。為了達成該等性能，必須減小 BN 凝集粒子間之空隙或接觸阻力。然而，現狀是為了減小 BN 凝集粒子間之接觸阻力，必須於一定壓力下進行成形，因此該壓力導致 BN 凝集粒子發生崩解，一次粒子於成形面方向發生配向，結果於成形面垂直方向之熱傳導較低，未達到實用水平。即，期望即便於一定壓力下亦可於散熱片材垂直方向上賦予較高熱傳導性之 BN 凝集粒子，進而期望開發 BN 凝集粒子本身具有較高熱傳導

性之凝集粒子。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

【0011】

[專利文獻 1]日本專利特開 2006-257392 號公報

[專利文獻 2]日本專利特表 2008-510878 號公報

[專利文獻 3]日本專利特開平 9-202663 號公報

[專利文獻 4]日本專利特開 2013-241321 號公報

[專利文獻 5]日本專利特開 2011-6586 號公報

[專利文獻 6]日本專利特開 2005-232313 號公報

【發明內容】

(發明所欲解決之問題)

【0012】 根據本發明者等人之研究，得知習知之 BN 凝集粒子中，構成 BN 凝集粒子之一次粒子間之界面及一次粒子之低結晶性為降低 BN 凝集粒子之熱傳導之原因之一。即，認為該等原因在於負責熱傳導之聲子於一次粒子界面及一次粒子中之晶界處發生散射。

【0013】 又，得知於對樹脂填充有習知之 BN 凝集粒子之情形時，藉由增大 BN 凝集粒子而有可能於一定程度上減小凝集粒子間之接觸阻力，但構成 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子之配向會使 BN 凝集粒子彼此之接觸阻力增大，成為熱傳導性降低的原因。即，認為為了提高作為成形體之熱傳導性有效的是控制構成 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子之配向，減小 BN 凝集粒子彼此之接觸阻力，並且提高構成 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子之結晶性，進而減少構成 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子中之粒界。

【0014】 本發明之課題在於解決上述習知之問題，製造一種構成 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子為高熱傳導性，且 BN 凝集粒子彼此之接觸阻力亦獲得減小的 BN 凝集粒子，並提供一種對各種成形體之適用性優異之 BN 凝集粒子及其製造方法。又，本發明之課題在於提供一種含有該 BN 凝集粒子與樹脂之含 BN 凝集粒子之樹脂組成物、及使該含 BN 凝集粒子之樹脂組成物成形而成之成形體。

【0015】 又，本發明之課題在於進一步發展上述見解，提供一種具有較高熱傳導性，且具有較高耐電壓性之片材。

(解決問題之技術手段)

【0016】 本發明者等人經過反覆之努力研究，結果發現：藉由將製作 BN 凝集粒子時之原料漿體黏度設於特定範圍，而構成 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子中之平均微晶粒徑變大。藉由平均微晶粒徑變大而一次粒子中之微晶間之粒界減少，結果成功提高 BN 凝集粒子之熱傳導性。進而驚奇地發現：如此所製作之 BN 凝集粒子由於構成 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子之特定結晶面發生配向，故而使用該 BN 凝集粒子製作成形體時，可製成熱傳導性高於習知 BN 凝集粒子之成形體，從而完成本發明。

【0017】 即，本發明之第 1 要旨係以下之(a-1)至(a-13)。

(a-1)一種 BN 凝集粒子，其係氮化硼一次粒子(以下稱為「BN 一次粒子」)凝集而成之氮化硼凝集粒子(以下稱為「BN 凝集粒子」)，其特徵在於：對利用 10 mm ϕ 之粉末錠劑成形機於 0.85 ton/cm² 之成型壓力下成型所獲得之顆粒狀試樣進行粉末 X 射線繞射測定，所測得之 BN 一次粒子之(100)面與(004)面之峰面積強度比((100)/(004))為 0.25 以上，且將該 BN 凝集粒子以表面成為平滑之方式填充於深度 0.2 mm 之

玻璃試樣板後進行粉末 X 射線繞射測定，由所測得之 BN 一次粒子之 (002) 面峰值所求出之 BN 一次粒子之平均微晶粒徑為 375 Å 以上。

(a-2) 如(a-1)記載之 BN 凝集粒子，其中，BN 凝集粒子之平均粒徑 D_{50} 為 26 μm 以上。

(a-3) 如(a-1)或(a-2)記載之 BN 凝集粒子，其中，BN 凝集粒子之比表面積為 8 m^2/g 以下。

(a-4) 如(a-1)至(a-3)中任一項記載之 BN 凝集粒子，其中，BN 凝集粒子為球狀。

(a-5) 如(a-1)至(a-4)中任一項記載之 BN 凝集粒子，其中，BN 凝集粒子具有卡屋構造。

(a-6) 一種 BN 凝集粒子組成物，其係(a-1)至(a-5)中任一項記載之 BN 凝集粒子與其他填料之混合物。

(a-7) 一種含 BN 凝集粒子之樹脂組成物，其包含樹脂與(a-1)至(a-5)中任一項記載之 BN 凝集粒子。

(a-8) 一種成形體，其包含(a-1)至(a-5)中任一項記載之 BN 凝集粒子。

【0018】

(a-9) 一種 BN 凝集粒子之製造方法，其係包括對原料氮化硼粉末之漿體(以下稱為「BN 漿體」)進行造粒之步驟及進行加熱處理之步驟的製造 BN 凝集粒子之方法，其特徵在於：

於上述造粒步驟中，該 BN 漿體之黏度為 200 $\text{mPa} \cdot \text{s}$ 以上且 5000 $\text{mPa} \cdot \text{s}$ 以下，於上述加熱步驟中，於 1800°C 以上且 2300°C 以下進行加熱處理。

(a-10) 如(a-9)記載之 BN 凝集粒子之製造方法，其中，原料氮化硼

粉末中之氧濃度為 1 質量%以上且 10 質量%以下。

(a-11)一種 BN 凝集粒子，其係藉由(a-9)或(a-10)記載之製造方法而獲得。

【0019】

(a-12)一種片材，其係含有氮化硼凝集粒子(以下稱為「BN 凝集粒子」)者，其特徵在於：

對該片材進行 X 射線繞射測定所測得之該片材中之氮化硼一次粒子(以下稱為「BN 一次粒子」)之(100)面與(004)面之峰強度比((100)/(004))為 1.0 以上，且

由對該片材進行 X 射線繞射測定所測得之該片材中之 BN 一次粒子之(002)面峰值所求出之 BN 一次粒子之平均微晶粒徑為 375 Å 以上。

(a-13)如(a-12)記載之片材，其中，對上述片材進行 X 射線繞射測定所測得之該片材中之氮化硼一次粒子(以下稱為「BN 一次粒子」)之(100)面與(004)面之峰面積強度比((100)/(004))為 0.6 以上。

【0020】 又，本發明之第二要旨係以下之(b-1)至(b-10)。

(b-1)一種含氮化硼凝集粒子之組成物，其係包含由氮化硼一次粒子凝集而成之氮化硼凝集粒子(A)與無機粒子(B)的組成物，其特徵在於：至少氮化硼凝集粒子(A)具有卡屋構造，氮化硼凝集粒子(A)之體積平均粒徑(D_{50})為 25 μm 以上，且氮化硼凝集粒子(A)之體積平均粒徑(D_{50})>無機粒子(B)之體積平均粒徑(D_{50})。

該組成物藉由氮化硼凝集粒子(A)具有卡屋構造，且氮化硼凝集粒子(A)與無機粒子之體積平均粒徑(D_{50})滿足上述關係，可減弱構成 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子中之晶界處產生之聲子散射，其結果表現出較高熱傳導性。

於成形面垂直方向(成形體厚度方向)上表現出較高熱傳導性，較佳為對功率半導體裝置等中所需之散熱片材非常有用。

【圖式簡單說明】

【0025】

圖 1 係本發明之 BN 凝集粒子之倍率 20 萬倍之掃描式電子顯微鏡 (以下稱為「SEM」)照片。

圖 2 係本發明之 BN 凝集粒子之倍率 100 萬倍之 SEM 照片。

圖 3 係卡屋構造之模式圖。

圖 4 係實施例中所獲得之絕緣電路基板之圖案之照片。

圖 5 係實施例中所獲得之含 BN 凝集粒子之片材之剖面 SEM 照片。

圖 6 係實施例中所獲得之使用絕緣電路基板之半導體裝置之形狀之照片。

【實施方式】

【0026】 以下詳細地說明本發明之實施形態，但本發明並不限定於以下之實施形態，可於其要旨之範圍內施加各種變化而實施。

【0027】

[BN 凝集粒子]

本發明之 BN 凝集粒子係 BN 一次粒子凝集而形成者，亦可於無損本案發明效果之範圍內含有上述 BN 一次粒子以外之成分。作為 BN 一次粒子以外之成分，可列舉源自下述[BN 凝集粒子之製造方法]中所記述之可添加至漿體中之黏合劑、界面活性劑、溶劑的成分。

【0028】 本發明之 BN 凝集粒子之形態並無特別限制，較佳為以圖 1 所示之球狀之形態為特徵，又，BN 凝集粒子之形態可藉由 SEM 而確認。此處，所謂「球狀」，係指縱橫比(長徑與短徑之比)為 1 以上

且 2 以下、較佳為 1 以上且 1.5 以下。本發明之 BN 凝集粒子之縱橫比可藉由如下方式確定：自使用 SEM 所拍攝之影像中任意選擇 200 個以上之粒子，分別求出長徑與短徑之比，並算出平均值。

【0029】 又，BN 凝集粒子較佳為於 BN 凝集粒子表面處 BN 一次粒子之結晶自 BN 凝集粒子之中心側朝向表面側呈放射狀成長之海膽樣形態、BN 一次粒子為小板且該等燒結凝集而成之海膽樣之球狀形態。又，BN 凝集粒子較佳為具有卡屋構造。所謂卡屋構造，例如於陶瓷 43 No.2(2008 年，日本陶瓷協會發行)中有記載，係板狀粒子於不配向之情況下進行複雜積層而成之構造。更具體而言，所謂具有卡屋構造之 BN 凝集粒子，係 BN 一次粒子之集合體，且係具有一次粒子之平面部與端面接觸之構造(參照圖 3)的 BN 凝集粒子，較佳為球狀。又，卡屋構造較佳為於粒子內部亦為相同構造。該等 BN 凝集粒子之凝集形態及內部構造可藉由掃描式電子顯微鏡(SEM)進行確認。

【0030】 關於本發明之 BN 凝集粒子，構成 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子具有特定物性，以下進行詳細說明。再者，供於本說明書中所規定之物性測定的試樣(粉體)可為成形為成形體前之 BN 凝集粒子粉體，亦可為含有 BN 凝集粒子之成形體或自成形體所取出之 BN 凝集粒子粉體。較佳為成形為成形體前之 BN 凝集粒子粉體。

【0031】

(BN 凝集粒子之特性)

・一次粒子之大小

構成 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子之長軸通常為 0.5 μm 以上，較佳為 0.6 μm 以上，更佳為 0.8 μm 以上，進而較佳為 1.0 μm 以上，尤佳為 1.1 μm 以上。且，通常為 10 μm 以下，較佳為 5 μm 以下，更佳

【0037】 又，作為另一表現，將 BN 凝集粒子利用 $10\text{ mm}\phi$ 之粉末錠劑成形機於 0.85 ton/cm^2 以上且 2.54 ton/cm^2 以下之成形壓力下進行成形，所獲得之顆粒狀試樣中之構成 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子之 (100)面與(004)面之峰面積強度比((100)/(004))通常為 0.25 以上，較佳為 0.30 以上，更佳為 0.35 以上，進而較佳為 0.40 以上，且，通常為 2.0 以下，較佳為 1.5 以下，更佳為 1.2 以下。若過大，則有成為成形體時 BN 凝集粒子間之接觸阻力變大之傾向，若過小，則有 BN 凝集粒子發生崩解而厚度方向上之熱傳導性未提高之傾向。

【0038】 通常，對散熱片材等而言最佳之壓製壓力條件根據散熱片材種類之不同有差異。分散於樹脂基質中之 BN 凝集粒子雖置身於各用途所對應之壓力條件下，但通常 BN 粒子有 ab 面於與壓力方向正交之方向上發生配向之傾向。即便於使用 BN 凝集粒子之情形時，於成形壓力下粒子發生變形，結果有 ab 面於與壓力方向正交之方向上發生配向之傾向。例如認為樹脂製高散熱基板係於如 0.85 ton/cm^2 以上且 2.54 ton/cm^2 以下之相對較高壓力下成形，以減少樹脂製基板內部之空隙或使所分散之 BN 凝集粒子彼此完全接觸。因此，提高熱傳導性所必需的是即便於上述壓力範圍下 BN 一次粒子之配向變化亦較少之 BN 凝集粒子。

【0039】 於本發明中，滿足本說明書規定之物性之 BN 凝集粒子，較佳為構成 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子具有卡屋構造，即具有藉由 BN 一次粒子彼此以一次粒子平面部與端面部接觸所形成之相互補強構造，因此可於較廣之成形壓力範圍下抑制 BN 凝集粒子之變形。最佳之壓力範圍根據用途之不同而有差異，但為了實現成形體厚度方向上之高熱傳導化，較佳為達成於 0.85 ton/cm^2 以上且 2.54 ton/cm^2 之

範圍中至少一定以上之一次粒子配向得以保持的狀態。

【0040】 所謂一定以上之一次粒子配向，例如以一次粒子之(100)面與(004)面之峰面積強度比((100)/(004))進行表現，此係表現於(004)面，即與壓力方向正交之方向上 ab 面進行配向之比例小至何種程度。因此，上述峰面積強度比越大，則因成形壓力引起之 BN 凝集粒子之變形越少。認為峰面積強度比至少需為 0.25 以上以達成高熱傳導性。關於峰面積強度比之下限、上限係如上所述。再者，關於 0.85 ton/cm^2 以上且 2.54 ton/cm^2 以下之範圍中之峰面積強度比，只要於上述壓力範圍中之某壓力下滿足既定數值即可，無需於本發明之整個壓力範圍中均達成既定數值。又，較佳為於 0.85 ton/cm^2 、 1.69 ton/cm^2 、 2.54 ton/cm^2 三個壓力值下滿足既定數值。

【0041】 再者，上述峰面積強度比，係於錠劑成形機($10 \text{ mm } \phi$)內填充約 0.2 g 粉末，使用手動油壓式泵(理研精機公司製造之 P-1B-041)，於各壓製壓下進行錠劑成形，將所獲得之試樣供於測定(例如 0.85 ton/cm^2 、 1.69 ton/cm^2 、 2.54 ton/cm^2 等)。測定係使用荷蘭 PANalytical 公司製造之 X'Pert Pro MPD 粉末 X 射線繞射裝置，藉此可計算所對應之峰面積之強度比。

【0042】

• BN 凝集粒子之平均粒徑(D_{50})

BN 凝集粒子之平均粒徑(D_{50})通常為 $5 \mu\text{m}$ 以上，較佳為 $10 \mu\text{m}$ 以上，更佳為 $25 \mu\text{m}$ 以上，進而較佳為 $26 \mu\text{m}$ 以上，尤佳為 $30 \mu\text{m}$ 以上，最佳為 $40 \mu\text{m}$ 以上，亦可為 $45 \mu\text{m}$ 以上，亦可為 $50 \mu\text{m}$ 以上。又，通常為 $200 \mu\text{m}$ 以下，較佳為 $150 \mu\text{m}$ 以下，更佳為 $100 \mu\text{m}$ 以下。若過大，則成為成形體時表面平滑性變差，BN 凝集粒子間之間隙變多等，因此

有熱傳導性未提高之傾向，若過小，則有成為成形體時 BN 凝集粒子間之接觸阻力變大、BN 凝集粒子本身之熱傳導性變低等傾向。

【0043】 再者， D_{50} 意指將供於測定之粉體之體積設為 100%而繪製累積曲線時累積體積恰好成為 50%時之粒徑，關於其測定方法，作為濕式測定法，可對使 BN 凝集粒子分散於含有六偏磷酸鈉作為分散穩定劑之純水介質中而成之試樣，使用雷射繞射/散射式粒度分佈測定裝置等進行測定，作為乾式測定法，可使用 Malvern 公司製造之「Morphologi」進行測定。

【0044】

・破壞強度

BN 凝集粒子之破壞強度通常為 2.5 MPa 以上，較佳為 3.0 MPa 以上，更佳為 3.5 MPa 以上，進而較佳為 4.0 MPa 以上，且，通常為 20 MPa 以下，較佳為 15 MPa 以下，更佳為 10 MPa 以下。若過大，則粒子之強度過強，因此有成為成形體時表面平滑性變差、熱傳導性下降之傾向，若過小，則有於製作成形體時之壓力下粒子易變形、熱傳導性未提高之傾向。

【0045】 再者，破壞強度係可依據 JIS R 1639-5 對 1 顆粒子進行壓縮試驗，根據下述式而算出。通常對 5 顆以上之粒子進行測定，採用其平均值。

$$\text{式：} Cs = 2.48P/\pi d^2$$

Cs：破壞強度(MPa)

P：破壞試驗力(N)

d：粒徑(mm)

【0046】

- 總細孔體積

BN 凝集粒子之總細孔體積通常為 $2.2 \text{ cm}^3/\text{g}$ 以下。總細孔體積較小者由於 BN 凝集粒子內較密實，故而可減少阻礙熱傳導之界面，成為熱傳導性更高之 BN 凝集粒子。BN 凝集粒子之總細孔體積若過大，則於使用作為組成物中之填料之情形時，存在樹脂滲入至細孔內而視黏度上升之情況，有可能使組成物變得難以成形加工或塗佈液變得難以塗佈。

【0047】 BN 凝集粒子之總細孔體積之下限值並無特別限制，通常為 $0.01 \text{ cm}^3/\text{g}$ 。本發明之總細孔體積較佳為 $0.01 \text{ cm}^3/\text{g}$ 以上，更佳為 $0.02 \text{ cm}^3/\text{g}$ 以上，且，較佳為 $2 \text{ cm}^3/\text{g}$ 以下，更佳為 $1.5 \text{ cm}^3/\text{g}$ 以下。凝集 BN 粉末之總細孔體積，可利用氮吸附法及水銀壓入法進行測定。

【0048】

- 比表面積

BN 凝集粒子之比表面積通常為 $1 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上，較佳為 $3 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上且 $50 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下，更佳為 $5 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上且 $40 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下。又，較佳亦為 $8 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下，較佳亦為 $7.25 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下。若 BN 凝集粒子之比表面積為該範圍，則與樹脂進行複合化時，有減小 BN 凝集粒子彼此之接觸阻力之傾向，亦可抑制含 BN 凝集粒子之樹脂組成物之黏度上升，因此較佳。比表面積，可利用 BET1 點法(吸附氣體：氮氣)進行測定。

【0049】

- 體密度

於將 BN 凝集粒子使用作為填料之情形時，為了將樹脂之滲入減少至最小，BN 凝集粒子之體密度較大為佳，通常較佳為 $0.3 \text{ g}/\text{cm}^3$ 以上，更佳為 $0.35 \text{ g}/\text{cm}^3$ 以上，進而較佳為 $0.4 \text{ g}/\text{cm}^3$ 以上。於 BN 凝集

粒子之體密度過小之情形時有如下傾向：表觀體積變大，相對於含 BN 凝集粒子之樹脂組成物中之樹脂而言，所添加之 BN 凝集粒子之體積變大，並且樹脂之滲入變多，又，BN 凝集粒子之操作性明顯變差。關於 BN 凝集粒子之體密度之上限，並無特別限制，通常為 0.95 g/cm^3 以下，較佳為 0.9 g/cm^3 以下，更佳為 0.85 g/cm^3 以下。若 BN 凝集粒子之體密度過大，則有於含 BN 凝集粒子之樹脂組成物中產生凝集 BN 之分散不均、易沈澱之傾向。再者，BN 凝集粒子之體密度，可採用測定粉體體密度之通常之裝置或方法而求出。

【0050】

[BN 凝集粒子之製造方法]

本發明之 BN 凝集粒子，較佳為使用黏度為 $200 \sim 5000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 之包含原料 BN 粉末之漿體(以下有時稱為「BN 漿體」)進行粒子造粒，對造粒粒子進行加熱處理，藉此於保持該造粒粒子之大小之狀態下使構成 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子之微晶成長而可製造。BN 漿體之黏度較佳為 $300 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 以上，更佳為 $500 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 以上，進而較佳為 $700 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 以上，尤佳為 $1000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 以上，且，較佳為 $4000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 以下，更佳為 $3000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 以下。

【0051】 上述 BN 漿體黏度會對所生成之 BN 凝集粒子之體積基準之平均粒徑 D_{50} 、及構成 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子之平均微晶粒徑造成較大影響，藉由使該黏度成為 $200 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 以上，可增大 BN 一次粒子之平均微晶粒徑及 BN 凝集粒子之體積基準之平均粒徑 D_{50} 。另一方面，藉由使 BN 漿體黏度成為 $5000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 以下，可容易地進行造粒。BN 漿體黏度之調整方法於下文進行說明。

【0052】 再者，本發明中之所謂 BN 漿體黏度，係使用 FUNGILAB

公司之旋轉黏度計「VISCO BASIC Plus R」，以葉片轉速 100 rpm 進行測定所測得之黏度。進而，於將本發明之 BN 凝集粒子作為填料而製作含 BN 凝集粒子之樹脂組成物之情形時，即便為相同之填充量，與其他 BN 粒子相比亦可顯著改善所獲得之成形體之熱傳導率。推測其原因在於：本發明之 BN 凝集粒子，係藉由構成 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子之平均結晶粒徑之增大而使 BN 一次粒子中之晶界得以減少，構成 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子之特定面進行配向，認為較佳為亦受到如下因素影響：藉由凝集粒子之體積基準之平均粒徑 D_{50} 較大而使 BN 凝集粒子間之接觸阻力得以減小。

【0053】 本發明之 BN 凝集粒子不僅 BN 凝集粒子本身之熱傳導性較高，與樹脂複合化所製成之成形體之熱傳導性亦變高。即，根據本案發明發現了藉由將業者未曾想到進行通常控制之漿體黏度控制於特定範圍而可增大構成 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子之平均微晶粒徑的製造方法。

【0054】 進而，根據本發明發現了藉由將上述漿體黏度控制於特定範圍而製造本發明所規定之 BN 凝集粒子的方法。再者，上述峰強度比及微晶粒徑，亦可通過對由 BN 漿體所製造之造粒粒子進行加熱處理時之煅燒溫度、原料 BN 粉末中所存在之氧濃度進行控制。具體而言，如後所述，藉由使對由 BN 漿體所製造之造粒粒子進行加熱處理時之煅燒溫度範圍成為 1800°C 以上且 2300°C 以下，可使峰強度比成為 3 以上，藉由使用原料 BN 粉末中所存在之氧濃度為 1.0 重量%以上之原料，可將微晶粒徑控制於所需範圍。即，藉由使用煅燒溫度範圍適宜與氧濃度適宜之原料 BN 粉末，可同時控制上述峰強度比與上述平均微晶粒徑。

【0055】 藉此可製作如下 BN 凝集粒子：於將 BN 凝集粒子製成含 BN 凝集粒子之樹脂組成物時之 BN 凝集粒子間之接觸阻力減小，且構成 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子中之晶界減少，該構成 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子之特定結晶面進行配向，熱傳導性較高。根據本發明所獲得之 BN 凝集粒子由於可在維持高熱傳導性之同時被設計成各種大小，故而可廣泛應用於作為成形體之用途。

【0056】

{漿體之製備}

<原料 BN 粉末>

・原料 BN 粉末之種類

作為本發明中所使用之原料 BN 粉末，可無限制地使用市售之 h-BN、市售之 α 及 β -BN、藉由硼化合物與氨之還原氮化法所製作之 BN、由硼化合物與三聚氰胺等含氮化合物所合成之 BN 等中之任意者，就進一步發揮本發明之效果之方面而言，可尤佳地使用 h-BN。

【0057】

・原料 BN 粉末之結晶性

作為本發明中所使用之原料 BN 粉末之形態，較佳為藉由粉末 X 射線繞射測定所測得之峰值之半值寬較寬、結晶性較低之粉末狀 BN 粒子。作為結晶性之標準，由粉末 X 射線繞射測定所測得之(002)面之峰值半值寬於 2θ 之角度下通常為 0.4° 以上，較佳為 0.45° 以上，更佳為 0.5° 以上。且，通常為 2.0° 以下，較佳為 1.5° 以下，進而較佳為 1° 以下。若大於上述上限，則微晶未充分變大，需要長時間以使之增大，因此有生產性變差之傾向。若未滿上述下限，則結晶性過高，結晶未見充分成長，又，漿體製作時有分散穩定性變差之傾向。再者，粉末

X 射線繞射測定方法記載於下述實施例項中。

【0058】

・原料 BN 粉末中之氧原子濃度

就 BN 結晶成長之觀點而言，較佳為原料 BN 粉末中存在一定程度之氧原子，於本發明中，原料 BN 粉末中之總氧濃度通常為 1 質量%以上，較佳為 2 質量%以上，更佳為 3 質量%以上，進而較佳為 4 質量%以上。且，通常為 10 質量%以下，進而較佳為 9 質量%以下。若大於上述上限，則於熱處理後亦容易殘留有氧，因此有熱傳導性之改善效果變小之傾向。若未滿上述下限，則結晶性過高，結晶未見成長，由粉末 X 射線繞射測定可確認到之峰強度比有偏離所需範圍之傾向。

【0059】 於本發明中，即便藉由使用原料 BN 粉末中所存在之氧濃度為 1.0 重量%以上之原料，亦可將構成 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子之平均微晶粒徑控制於所需範圍。再者，作為將原料 BN 粉末之總氧濃度調整為上述範圍之方法，可列舉例如：於 1500℃ 以下之較低合成溫度下進行 BN 合成之方法、於 500℃～900℃ 之低溫氧化環境中對原料 BN 粉末進行熱處理之方法等。再者，原料 BN 粉末之總氧濃度，可藉由惰性氣體融解-紅外線吸收法，使用堀場製作所股份有限公司製造之氧・氮分析計進行測定。

【0060】

・原料 BN 粉末之總細孔體積及比表面積

原料 BN 粉末之總細孔體積通常為 1.0 cm³/g 以下，較佳為 0.3 cm³/g 以上且 1.0 cm³/g 以下，更佳為 0.5 cm³/g 以上且 1.0 cm³/g 以下。藉由總細孔體積為 1.0 cm³/g 以下，原料 BN 粉末變得密實，因此可成為球形度較高之造粒。

【0061】 原料 BN 粉末之比表面積通常為 $50 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上，較佳為 $60 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上，更佳為 $70 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上。且，通常為 $1000 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下，較佳為 $500 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下，更佳為 $300 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下。藉由原料 BN 粉末之比表面積為 $50 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上，於藉由進行造粒而實現球形化時可減小所使用之 BN 漿體中之分散粒徑，因此較佳。又，藉由設為 $1000 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下，可抑制漿體黏度增大，因此較佳。再者，原料 BN 粉末之總細孔體積可利用氮吸附法及水銀壓入法進行測定，比表面積可利用 BET1 點法(吸附氣體：氮氣)進行測定。原料 BN 粉末之總細孔體積及比表面積之具體測定方法記載於下述實施例項中。

【0062】

<介質>

作為 BN 漿體製備所使用之介質，並無特別限制，可使用水及/或各種有機溶劑，就噴霧乾燥之容易度、裝置之簡單化等觀點而言，較佳為使用水，更佳為純水。

【0063】 BN 漿體製備所使用之介質之使用量，較佳為添加使 BN 漿體黏度成為 $200 \sim 5000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 之量。具體而言，BN 漿體製備所使用之介質之使用量通常為 10 質量%以上，較佳為 20 質量%以上，更佳為 30 質量%以上，且，通常為 70 質量%以下，較佳為 65 質量%以下，更佳為 60 質量%以下。若介質之使用量大於上述上限，則漿體黏度變得過低，因此有因沈澱等導致 BN 漿體之均勻性受損、構成所獲得之 BN 凝集粒子的 BN 一次粒子之微晶粒徑偏離所需範圍的傾向。若未滿下限，則漿體黏度過高，因此有難以造粒之傾向。即，若上述介質之使用量為上述範圍外，則難以同時滿足 BN 凝集粒子之大小、構成 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子之結晶性、及 BN 一次粒子中之晶界之減少。

【0064】

<界面活性劑>

就漿體黏度調節、及漿體中原料 BN 粉末之分散穩定性(凝集抑制)之觀點而言，較佳為對 BN 漿體添加各種界面活性劑。作為界面活性劑，可使用陰離子系界面活性劑、陽離子系界面活性劑、非離子性界面活性劑等，該等可單獨使用 1 種，亦可將 2 種以上混合使用。

【0065】 一般而言，界面活性劑可使漿體黏度發生變化。因此，於對 BN 漿體添加界面活性劑之情形時，將其量調整為如使 BN 漿體黏度成為 $200 \sim 5000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 之量。例如使用藉由粉末 X 射線繞射測定所測得之(002)面峰值之半值寬 2θ 為 0.67° 、氧濃度為 7.5 質量%的 BN 作為原料 BN 而製備固形份 50 質量%之漿體的情形時，通常作為陰離子性界面活性劑之有效成分，相對於漿體總量，通常添加 0.01 質量%以上、較佳為 0.05 質量%以上、更佳為 0.1 質量%以上，且，通常添加 10 質量%以下、較佳為 7 質量%以下、更佳為 5 質量%以下、進而較佳為 3 質量%以下。若大於上述上限，則有漿體黏度過度下降、且源自界面活性劑之碳成分易殘留於所生成之 BN 凝集粒子中的傾向。若未滿上述下限，則有漿體黏度變得過高而造粒本身變得困難之傾向。

【0066】

<黏合劑>

為了有效地將原料 BN 粉末造粒成粒子狀，BN 漿體亦可含有黏合劑。黏合劑係用於發揮使 BN 一次粒子牢固結合而使造粒粒子穩定化之作用。作為 BN 漿體所使用之黏合劑，只要為可提高 BN 粒子彼此之接著性者即可，於本發明中，由於造粒粒子於粒子化後會對其進行加熱處理，因此較佳為具有相對於該加熱處理步驟中之高溫條件之耐熱

性。

【0067】 作為上述黏合劑，可較佳地使用氧化鋁、氧化鎂、氧化釔、氧化鈣、氧化矽、氧化硼、氧化銻、氧化鋯、氧化鈦等金屬氧化物等。該等之中，就作為氧化物之熱傳導性與耐熱性、使 BN 粒子彼此結合之結合力等觀點而言，較佳為氧化鋁、氧化釔。再者，黏合劑亦可使用如氧化鋁溶膠之液狀黏合劑，亦可為會於加熱處理中進行反應而轉化為其他無機成分者。該等黏合劑可單獨使用 1 種，亦可將 2 種以上混合使用。

【0068】 黏合劑之使用量(於液狀黏合劑之情形時為以固形份計之使用量)，相對於 BN 漿體中之原料 BN 粉末，通常為 0 質量%以上且 30 質量%以下，較佳為 0 質量%以上且 20 質量%以下，更佳為 0 質量%以上且 15 質量%以下。若超過上述上限，則造粒粒子中之原料 BN 粉末之含量變少，不僅會影響結晶成長且於使用作為熱傳導性填料之情形時熱傳導性改善效果變小。

【0069】

<漿體製備方法>

關於漿體製備方法，只要原料 BN 粉末及介質、進而視需要之黏合劑、界面活性劑均勻分散，且調整於所需黏度範圍，則並無特別限定，於使用原料 BN 粉末及介質、進而視需要之黏合劑、界面活性劑之情形時，較佳為以下述方式製備。

【0070】 計量既定量之原料 BN 粉末於樹脂製之瓶內，繼而添加既定量之黏合劑。進而添加既定量之界面活性劑後，添加氧化鋯性陶瓷球，於球磨機旋轉台上攪拌 0.5~5 h 左右直至成為所需黏度。添加順序並無特別限制，於對大量原料 BN 粉末進行漿體化之情形時，由

於易出現塊狀等凝集物，故而亦可於水中添加界面活性劑與黏合劑而製作水溶液後，逐次少量添加既定量之原料 BN 粉末，於其中添加氧化鋇性陶瓷球，於球磨機旋轉台上進行分散而實現漿體化。

【0071】 又，於分散時，除使用球磨機以外，亦可使用珠磨機、行星式混合機等分散裝置。於漿體化時，於 10℃ 以上且 60℃ 以下之漿體溫度下進行。若低於下限，則有漿體黏度上升而偏離所需黏度範圍之傾向，若高於上限，則原料 BN 粉末易於水溶液中分解成氨。通常為 10℃ 以上且 60℃ 以下，較佳為 15℃ 以上且 50℃ 以下，更佳為 15℃ 以上且 40℃ 以下，進而較佳為 15℃ 以上且 35℃ 以下。

【0072】

{造粒}

於由 BN 漿體獲得造粒粒子時，可採用噴霧乾燥法、轉動法、流動層法或攪拌法等一般造粒方法，其中較佳為噴霧乾燥法。噴霧乾燥法可藉由成為原料之漿體之濃度、每單位時間於裝置內導入之送液量、及將所送液之漿體進行噴霧時之空壓壓力及空壓量，而製造所需大小之造粒粒子，亦可獲得球狀造粒粒子。所使用之噴霧乾燥裝置並無限制，為了製造更大之球狀造粒粒子，最佳為旋轉盤式者。作為上述裝置，可列舉：大川原化工機公司製造之噴霧乾燥機 F 系列、藤崎電機公司製造之噴霧乾燥機「MDL-050M」等。

【0073】 藉由造粒所獲得之造粒粒子之平均粒徑，於將本發明之 BN 凝集粒子之體積基準之平均粒徑範圍設為較佳為 5 μm 以上且 200 μm 以下之情形時，以體積基準之平均粒徑 D_{50} 計通常為 3 μm 以上，較佳為 5 μm 以上，更佳為 10 μm 以上，進而較佳為 15 μm 以上，進而更佳為 20 μm 以上，尤佳為 25 μm 以上，進而尤佳為 25 μm 以上，較

佳亦為 $26\ \mu\text{m}$ 以上，較佳亦為 $30\ \mu\text{m}$ 以上，較佳亦為 $35\ \mu\text{m}$ 以上。且，較佳為 $150\ \mu\text{m}$ 以下，更佳為 $100\ \mu\text{m}$ 以下。此處，造粒粒子之體積基準之平均粒徑 D_{50} ，例如於濕式之情形時，可利用堀場製作所製造之「LA920」進行測定，於乾式之情形時，可利用 Malvern 公司製造之「Morphologi」等進行測定。

【0074】

{加熱處理}

藉由進而於非氧化性氣體環境下對上述 BN 造粒粒子進行加熱處理，可製造 BN 凝集粒子。此處，所謂非氧化性氣體環境，係氮氣、氫氣、氬氣、氨氣、氫氣、甲烷氣體、丙烷氣體、一氧化碳氣體等環境。根據此處所使用之環境氣體種類之不同，凝集 BN 粒子之結晶化速度存在差異，為了於短時間內進行結晶化，可尤佳地使用氮氣、或將氮氣與其他併用之混合氣體。加熱處理溫度通常為 1800°C 以上且 2300°C 以下，較佳為 1900°C 以上且較佳為 2200°C 以下。若加熱處理溫度過低，則存在 BN 之平均微晶之成長不充分、BN 凝集粒子及成形體之熱傳導率變小的情況。若加熱處理溫度過高，則有 BN 發生分解等之虞。

【0075】 藉由將上述加熱處理溫度設為 1800°C 以上且 2300°C 以下，可使 BN 一次粒子之(100)面與(004)面之峰強度比((100)/(004))成為所需值。加熱處理時間通常為 3 小時以上，較佳為 4 小時以上，更佳為 5 小時以上，且，通常為 20 小時以下，較佳為 15 小時以下。於加熱處理時間未滿上述下限之情形時，結晶成長不充分，若超過上述上限，則有 BN 之一部分發生分解之虞。

【0076】 為了於非氧化性氣體環境下進行加熱處理，通常較佳為

使用真空泵對煅燒爐內進行排氣後，一邊導入非氧化性氣體一邊進行加熱而升溫至所需溫度，於煅燒爐內可充分利用非氧化性氣體置換之情形時，亦可於常壓下一邊導入非氧化性氣體一邊進行加熱升溫。作為煅燒爐，可列舉：焙室爐、管狀爐、氣體環境爐等批次式爐或旋轉窯、螺旋輸送爐、隧道爐、帶式爐、推送式爐、立式連續爐等連續爐，可根據目的而區分使用。

【0077】 通常為了減小煅燒時組成之不均勻性，將所要進行加熱處理之造粒粒子裝入圓形之石墨製帶蓋坩鍋內進行加熱煅燒。此時，為了減小組成之不均勻性並抑制因煅燒引起之 BN 凝集粒子彼此之燒結，亦可插入石墨製隔板。由隔板分割出之區域數量只要可抑制燒結則並無特別限制，通常分割成 2 區域以上且 16 區域以下。若分割出之區域數量多於上述上限，雖可抑制燒結，但有 BN 一次粒子之結晶成長不充分之傾向，若分割出之區域數量少於上述下限，則存在燒結加劇之情況。

【0078】

{分級}

關於上述加熱處理後之 BN 凝集粒子，為了縮小粒徑分佈，抑制含 BN 凝集粒子之樹脂組成物調配時之黏度上升，較佳為進行分級處理。該分級通常於造粒粒子之加熱處理後進行，亦可對加熱處理前之造粒粒子進行，其後供於加熱處理。

【0079】 分級可為濕式、乾式中之任一者，就抑制 BN 分解之觀點而言，較佳為乾式分級。尤其於黏合劑具有水溶性之情形時，可尤佳地採用乾式分級。乾式分級除有藉由篩進行之分級以外，亦有藉由離心力與流體阻力之差進行分級之風力分級等，亦可使用回旋氣流式

分級機、強制渦離心式分級機、半自由渦離心式分級機等分級機進行分級。該等之中，於對亞微米至單微米區域之較小微粒子進行分級時採用回旋氣流式分級機，對其以上之相對較大之粒子進行分級時採用半自由渦離心式分級機等，只要根據所要分級之粒子之粒徑而適當區分使用即可。

： **【0080】**

： [含 BN 凝集粒子之樹脂組成物]

本發明之含 BN 凝集粒子之樹脂組成物至少含有本發明之 BN 凝集粒子與樹脂。再者，本發明之 BN 凝集粒子就其形狀特徵之觀點而言，可較佳地使用作為含 BN 凝集粒子之樹脂組成物之填料。含 BN 凝集粒子之樹脂組成物中之 BN 凝集粒子之含有比例(以下有時稱為「填料填充量」)，係將 BN 凝集粒子與樹脂之合計設為 100 質量%時，通常為 5 質量%以上，較佳為 30 質量%以上，更佳為 50 質量%以上，且，通常為 95 質量%以下，較佳為 90 質量%以下。若大於上述上限，則黏度變得過高而無法確保成形加工性，並且因有損 BN 凝集粒子之密實填充而有熱傳導性下降之傾向，若未滿上述下限，雖可確保成形加工性，但 BN 凝集粒子過少而有熱傳導性未提高之傾向。

【0081】 又，本發明之另一樣態(第二要旨)之含 BN 凝集粒子之樹脂組成物至少含有上述具有特定物性之 BN 凝集粒子(A)、及與該 BN 凝集粒子不同之無機粒子(B)。

【0082】 作為上述與具有特定物性之 BN 凝集粒子(A)不同之無機粒子(B)之種類，並無特別限定，可使用任意者。其中，可列舉：氮化硼、氮化鋁、氧化鋁、氧化鋅、氧化鎂、氧化鈹、氧化鈦等，較佳為選自包含該等之群組中之一種以上，其中，就減小熱阻之方面而言，

較佳為氮化硼。

【0083】 所使用之 BN 凝集粒子(A)與無機粒子(B)較佳為滿足 BN 凝集粒子(A)之體積平均粒徑(D_{50}) > 無機粒子(B)之體積平均粒徑(D_{50})。於未滿足該條件之情形時，無法使粒子實現最密填充，熱傳導率下降。無機粒子(B)之 D_{50} 較佳為 BN 凝集粒子(A)之 D_{50} 之 0.95 倍以下，更佳為 0.8 倍以下，尤佳為 0.5 倍以下。藉由為該範圍，可無間隙地填充上述具有特定物性之 BN 凝集粒子間所存在之空隙，可充分減小熱阻、組成物內之缺陷，由包含該等之組成物所獲得之成形體具有較高之熱傳導度及耐電壓性。

【0084】 再者，無機粒子(B)之體積平均粒徑相對於 BN 凝集粒子(A)之體積平均粒徑的比之下限，只要滿足上述則並無特別限定，鑒於無機粒子(B)之操作性方面，或為了使熱阻、組成物內之缺陷減小之效果不會有發生較大變化之傾向，通常為 0.01 倍以上，較佳為 0.05 倍以上。

【0085】 又，無機粒子(B)之體積平均粒徑通常為 100 μm 以下，較佳為 60 μm 以下，另一方面，為 0.5 μm 以上，較佳為 1 μm 以上，更佳為 3 μm 以上。藉由為該範圍，可效率良好地填充粒子間之空隙，因此有成為高耐電壓性能・高熱傳導率之傾向。再者，只要滿足 BN 凝集粒子(A)之體積平均粒徑(D_{50}) > 無機粒子(B)之體積平均粒徑(D_{50})，無機粒子(B)亦可為凝集粒子。

【0086】

(含 BN 凝集粒子之組成物之成分比例)

含 BN 凝集粒子之組成物中之 BN 凝集粒子(A)之含有比例，相對於 BN 凝集粒子(A)與無機粒子(B)之合計，通常為 30 質量%以上，較

佳為 50 質量%以上，且，通常為 95 重量%以下，較佳為 90 質量%以下。藉由為該範圍，有因凝集粒子引起滲流(percolation)而成為高熱傳導率之傾向。含 BN 凝集粒子之組成物中之 BN 凝集粒子(A)與無機粒子(B)之合計含有比例(以下有時稱為「填料填充量」)，將 BN 凝集粒子(A)、無機粒子(B)及樹脂之合計設為 100 質量%時，通常為 5 質量%以上，較佳為 30 質量%以上，更佳為 50 質量%以上，且，通常為 95 質量%以下，較佳為 90 質量%以下。藉由為上述範圍，可確保使用該組成物製造成形體時之成形性，且有所獲得之成形體之熱傳導性變得良好之傾向。

【0087】

<樹脂>

作為含 BN 凝集粒子之樹脂組成物所使用之樹脂，並無特別限制，較佳為硬化性樹脂及/或熱可塑性樹脂。例如作為硬化性樹脂，可列舉：熱硬化性、光硬化性、電子束硬化性等，就耐熱性、吸水性、尺寸穩定性等方面而言，較佳為熱硬化性樹脂及/或熱可塑性樹脂，該等之中，更佳為環氧樹脂。該等樹脂亦可將 2 種以上組合使用。

【0088】 環氧樹脂可僅為具有 1 種構造單位之環氧樹脂，亦可將構造單位不同之複數種環氧樹脂進行組合。又，環氧樹脂視需要可與環氧樹脂用硬化劑、硬化促進劑一併使用。於使用環氧樹脂之情形時，其 Tg 並無特別限定，通常為 0℃ 以上，較佳為 10℃ 以上，更佳為 25℃ 以上，且，通常為 350℃ 以下，較佳為 300℃ 以下，更佳為 250℃ 以下。

【0089】 此處，鑒於塗膜性或成膜性或接著性，且為了減少硬化物中之空隙而獲得高熱傳導之硬化物，作為環氧樹脂，較佳為至少包

含下述苯氧基樹脂(以下有時稱為「環氧樹脂(A)」)。環氧樹脂(A)相對於環氧樹脂總量之質量比率並無特別限制，較佳為 5 質量%以上，更佳為 10 質量%以上，進而較佳為 15 質量%以上，尤佳為 16.0 質量%以上，特佳為 18.0 質量%以上，且，較佳為 95 質量%以下，更佳為 90 質量%以下，進而較佳為 80 質量%以下之範圍。

【0090】 所謂苯氧基樹脂，通常指使表鹵代醇與二元酚化合物反應所獲得之樹脂、或使二元環氧化合物與二元酚化合物反應所獲得之樹脂，於本發明中，將該等中之重量平均分子量 10000 以上之高分子量苯氧基樹脂設為環氧樹脂(A)。此處，所謂重量平均分子量，係利用凝膠滲透層析法所測得之聚苯乙烯換算之值。

【0091】 作為環氧樹脂(A)，較佳為具有選自包含萘骨架、萘骨架、聯苯骨架、蒽骨架、芘骨架、吡啶骨架、金剛烷骨架及二環戊二烯骨架之群組中之至少 1 種骨架的苯氧基樹脂；雙酚 A 型苯氧基樹脂、雙酚 F 型苯氧基樹脂、萘型苯氧基樹脂、酚系酚醛清漆型苯氧基樹脂、甲酚酚醛清漆型苯氧基樹脂、苯酚芳烷基型苯氧基樹脂、聯苯型苯氧基樹脂、三苯甲烷型苯氧基樹脂、二環戊二烯型苯氧基樹脂、縮水甘油酯型苯氧基樹脂、縮水甘油胺型苯氧基樹脂。其中，具有萘骨架及/或聯苯骨架之苯氧基樹脂、雙酚 A 型苯氧基樹脂、雙酚 F 型苯氧基樹脂，由於耐熱性或密接性得以進一步提高，故而尤佳。該等可單獨使用 1 種，亦可將 2 種以上混合使用。

【0092】 本發明之環氧樹脂除上述環氧樹脂(A)以外，較佳為含有分子內具有 2 個以上之環氧基之環氧樹脂(以下有時稱為「環氧樹脂(B)」)。作為上述環氧樹脂(B)，例如可列舉：雙酚 A 型環氧樹脂、雙酚 F 型環氧樹脂、萘型環氧樹脂、酚系酚醛清漆型環氧樹脂、甲酚酚

醛清漆型環氧樹脂、苯酚芳烷基型環氧樹脂、聯苯型環氧樹脂、三苯甲烷型環氧樹脂、二環戊二烯型環氧樹脂、縮水甘油酯型環氧樹脂、縮水甘油胺型環氧樹脂、多官能酚型環氧樹脂等各種環氧樹脂。其中，就耐熱性或密接性提高之方面而言，較佳為雙酚 A 型環氧樹脂、雙酚 F 型環氧樹脂、縮水甘油胺型環氧樹脂、多官能酚型環氧樹脂。該等可單獨使用 1 種，亦可將 2 種以上混合使用。

【0093】 上述環氧樹脂(B)就熔融黏度控制之觀點而言，其重量平均分子量較佳為 100~5000，更佳為 200~2000。重量平均分子量低於 100 者有耐熱性較差之傾向，若高於 5000，則有環氧樹脂之熔點變高而作業性下降之傾向。

【0094】 又，本發明之環氧樹脂可於無損其目的之範圍內含有環氧樹脂(A)與環氧樹脂(B)以外之環氧樹脂(以下有時稱為「其他環氧樹脂」)。其他環氧樹脂之含量，相對於環氧樹脂(A)與環氧樹脂(B)之合計，通常為 50 質量%以下，較佳為 30 質量%以下。

【0095】 環氧樹脂用硬化劑可根據所使用之樹脂之種類而適當選擇。例如可列舉酸酐系硬化劑或胺系硬化劑。作為酸酐系硬化劑，可列舉例如：四氫鄰苯二甲酸酐、甲基四氫鄰苯二甲酸酐、六氫鄰苯二甲酸酐及二苯甲酮四羧酸酐。作為胺系硬化劑，例如可列舉：乙二胺、二伸乙三胺、三伸乙四胺等脂肪族聚胺，二胺基二苯基砒、二胺基二苯甲烷、二胺基二苯醚、間苯二胺等芳香族聚胺及二氰二胺等。該等可單獨使用 1 種，亦可將 2 種以上混合使用。該等環氧樹脂用硬化劑通常於以相對於環氧樹脂之當量比計為 0.3 以上且 1.5 以下之範圍內調配。

【0096】 硬化促進劑可根據所使用之樹脂或硬化劑之種類而適

當選擇。例如作為上述酸酐系硬化劑用之硬化促進劑，可列舉例如：三氟化硼單乙胺、2-乙基-4-甲咪唑、1-異丁基-2-甲咪唑、2-苯基-4-甲咪唑。該等可單獨使用 1 種，亦可將 2 種以上混合使用。該等硬化促進劑通常於相對於環氧樹脂 100 質量份為 0.1 質量份以上且 30 質量份以下之範圍內使用。

【0097】 又，本發明之含 BN 凝集粒子之樹脂組成物之樹脂亦可為熱可塑性樹脂。作為熱可塑性樹脂，可列舉例如：聚乙烯樹脂、聚丙烯樹脂、乙烯-乙酸乙烯酯共聚合體樹脂等聚烯烴樹脂，聚對苯二甲酸乙二酯樹脂、聚對苯二甲酸丁二酯樹脂、液晶聚酯樹脂等聚酯樹脂，聚氯乙烯樹脂、苯氧基樹脂、丙烯酸系樹脂、聚碳酸酯樹脂、聚苯硫醚樹脂、聚苯醚樹脂、聚醯胺樹脂、聚醯胺醯亞胺樹脂、聚醯亞胺樹脂、聚醚醯胺醯亞胺樹脂、聚醚醯胺樹脂及聚醚醯亞胺樹脂等。又，亦包括該等之嵌段共聚合體、接枝共聚合體等共聚合體。該等可單獨使用 1 種，亦可將 2 種以上混合使用。

【0098】 又，本發明之含 BN 凝集粒子之樹脂組成物之樹脂亦可含有橡膠成分，作為橡膠成分，可列舉例如：天然橡膠、聚異戊二烯橡膠、苯乙烯-丁二烯共聚合體橡膠、聚丁二烯橡膠、乙烯-丙烯共聚合體橡膠、乙烯-丙烯-二烯共聚合體橡膠、丁二烯-丙烯腈共聚合體橡膠、異丁烯-異戊二烯共聚合體橡膠、氯丁二烯橡膠、矽橡膠、氟橡膠、氯磺化聚乙烯、聚胺基甲酸乙酯橡膠等。該等可單獨使用 1 種，亦可將 2 種以上混合使用。

【0099】

<其他成分>

本發明之含 BN 凝集粒子之樹脂組成物亦可於可獲得本發明效果

之範圍內進而含有其他成分。作為上述其他成分，可列舉例如上述樹脂以外之屬於無機填料之氮化鋁、氮化矽、纖維狀/板狀/粒子狀凝集 BN 等氮化物粒子；氧化鋁、纖維狀氧化鋁、氧化鋅、氧化鎂、氧化鈹、氧化鈦等絕緣性金屬氧化物；金剛石、富勒烯、氫氧化鋁、氫氧化鎂等無機填料；改善無機填料與基質樹脂之界面接著強度的矽烷偶合劑；等表面處理劑、還原劑等絕緣性碳成分；樹脂硬化劑；樹脂硬化促進劑；黏度調整劑；分散劑。其中，就熱傳導度提高、耐電壓提高之方面而言，較佳為氮化物粒子，更佳為粒子狀凝集 BN。再者，於使用本發明之漿體之情形時，就提高成膜性之方面而言，較佳為使用分散劑。

【0100】 又，就降低含 BN 凝集粒子之樹脂組成物之黏度之觀點而言，可對本發明之含 BN 凝集粒子之樹脂組成物使用溶劑。溶劑可自公知之溶劑中選用可溶解樹脂之溶劑。作為上述溶劑，例如作為有機溶劑，可列舉：甲基乙基酮、丙酮、環己酮、甲苯、二甲苯、一氯苯、二氯苯、三氯苯、苯酚及六氟異丙醇。該等可單獨使用 1 種，亦可將 2 種以上混合使用。

【0101】 溶劑可於相對於環氧樹脂等樹脂 100 質量份通常為 0～10,000 質量份之範圍內使用。

【0102】

[含 BN 凝集粒子之樹脂組成物之製造方法]

本發明之含 BN 凝集粒子之樹脂組成物可藉由將本發明之 BN 凝集粒子、視情況之無機粒子、樹脂及視需要添加之其他成分通過攪拌或混練而使之均勻混合而獲得。於進行該混合時，例如可使用混合機、捏合機、單軸或雙軸混練機等一般之混練裝置，混合時視需要可進行加熱。再者，於包含溶劑之系或樹脂為液體狀態而本發明之含 BN 凝

集粒子之組成物為具有流動性之漿體狀態(本說明書中亦稱為塗佈用漿體)之情形時，製成漿體時之製備方法並無特別限定，可採用習知公知之方法。再者，此時鑒於塗佈液之均勻性提高、脫泡等目的，較佳為使用塗料振盪機或珠磨機、行星式攪拌機、攪拌型分散機、自公轉攪拌混合機、三輥研磨機、捏合機、單軸或雙軸混練機等一般之混練裝置等進行混合・攪拌。

【0103】 關於各調配成分之混合順序，亦只要無反應或沈澱物發生等特殊問題則為任意，可列舉例如如下方法：使樹脂混合・溶解於有機溶劑(例如甲基乙基酮)而製成樹脂液，對所獲得之樹脂液添加混合將 BN 凝集粒子及下述其他成分充分混合而成者，其後，進而添加混合作為黏度調整用之有機溶劑後，進而添加混合樹脂硬化劑或硬化促進劑、或分散劑等添加劑。

【0104】

[BN 凝集粒子之成形體]

本發明之成形體係使用本發明之 BN 凝集粒子之成形體，較佳為使含 BN 凝集粒子之樹脂組成物成形而成者。成形體之成形方法可採用一般所使用之方法。例如於本發明之含 BN 凝集粒子之樹脂組成物具有可塑性或流動性之情形時，可藉由使該含 BN 凝集粒子之樹脂組成物於根據所需形狀，例如被收容於模具內之狀態下硬化而成形。

【0105】 上述成形體之製造可利用射出成形、射出壓縮成形、擠出成形、壓縮成形及真空壓縮成形。於上述漿體包含溶劑之情形時，可利用加熱板、熱風爐、IR 加熱爐、真空乾燥機、高頻加熱機等公知之加熱方法將溶劑去除。又，於本發明之含 BN 凝集粒子之樹脂組成物為環氧樹脂或聚矽氧樹脂等熱硬化性樹脂組成物之情形時，成形體

之成形，即硬化，可於各自之硬化溫度條件下進行。

【0106】 又，於本發明之含 BN 凝集粒子之樹脂組成物為熱可塑性樹脂組成物之情形時，成形體之成形可於熱可塑性樹脂之熔融溫度以上之溫度及既定之成形速度或壓力條件下進行。又，本發明之成形體亦可藉由將本發明之含 BN 凝集粒子之樹脂組成物之硬化物切削成所需形狀而獲得。

【0107】 作為本發明之 BN 凝集粒子之用途，即便於成形體中較佳亦為散熱片材(本說明書中亦簡稱為片材)。散熱片材之製造方法並無特別限制，可藉由習知技術之散熱片材之製造方法而製造。以下對使用包含 BN 凝集粒子之含 BN 凝集粒子之漿體而製造散熱片材之方法進行具體說明。片材之製造方法除製備上述漿體之步驟以外，亦至少具有下述將該漿體塗佈於基材(塗佈步驟)、加以乾燥之步驟(乾燥步驟)、對該塗佈乾燥物加壓而成形之步驟(片材化步驟)、及使該成形物熱硬化之步驟(熱硬化步驟)。

【0108】

<塗佈步驟>

首先，使用含 BN 凝集粒子之漿體於基板表面形成塗膜。即，使用漿體，利用浸漬法、旋轉塗佈法、噴塗法、刮刀塗佈法、其他任意方法形成塗膜。組成物塗佈液之塗佈時，藉由使用旋轉塗佈機、狹縫塗佈機、模具塗佈機、刮刀塗佈機、缺角輪塗佈機、網版印刷、刮刀、敷料器、噴霧塗佈機等塗佈裝置，可於基板上均勻形成既定膜厚之塗膜，較佳為可調整間隙之刮刀塗佈機。本發明之片材亦可使用作為自支撐膜，亦可於金屬箔或板(銅、鋁、銀、金)、PET/PEN 等樹脂薄膜、玻璃等公知之基材上製膜。再者，該等基板根據使用形態，可將其剝

離後使用，亦可製成如基板/散熱片材/基板之積層構造。再者，作為基板，一般使用下述厚度之銅箔，但並不限定於銅基板。又，基板表面可有凹凸，或亦可經過表面處理。

【0109】

<乾燥步驟>

其次，使塗佈於基板上之含 BN 凝集粒子之漿體乾燥而獲得塗佈乾燥物。乾燥溫度通常為 15℃ 以上，較佳為 20℃ 以上，更佳為 23℃ 以上，且，通常為 100℃ 以下，較佳為 90℃ 以下，更佳為 80℃ 以下，進而較佳為 70℃ 以下。若該乾燥之加熱溫度過低或加熱時間過短，則塗膜中之有機溶劑無法充分去除，有機溶劑殘留於所獲得之乾燥膜中，所殘留之有機溶劑於其次之片材化步驟中之高溫加壓處理下蒸發，殘留溶劑之蒸發痕跡成為空隙，從而無法形成具有高熱傳導性、高絕緣性、既定物理強度等之片材。相反地，若乾燥之加熱溫度過高或加熱時間過長，則樹脂進行硬化，無法製成良好之乾燥膜。

【0110】 又，乾燥時間通常為 1 小時以上，較佳為 2 小時以上，更佳為 3 小時以上，進而較佳為 4 小時以上，且，通常為 168 小時以下，較佳為 144 小時以下，更佳為 120 小時以下，進而較佳為 96 小時以下。於該乾燥時間未滿下限之情形時，無法將塗膜中之有機溶劑充分去除，有機溶劑殘留於所獲得之乾燥膜中，所殘留之有機溶劑於其次之片材化步驟中之高溫加壓處理下蒸發，殘留溶劑之蒸發痕跡成為空隙，從而無法形成具有高熱傳導性、高絕緣性、既定物理強度等之片材。相反地，若乾燥時間超過上限，則樹脂過度乾燥，不僅無法獲得強度良好之塗佈膜，且有如下傾向：即便藉由片材化步驟中之樹脂之可塑化亦無法獲得充分之流動性，樹脂無法充分浸透至片材內所存

在之空隙內，無法形成具有高熱傳導性、高絕緣性、既定物理強度等之片材。

【0111】 乾燥前之片材之膜厚通常為 100 μm 以上，較佳為 150 μm 以上，更佳為 200 μm 以上，進而較佳為 300 μm 以上，且，通常為 800 μm 以下，較佳為 700 μm 以下，更佳為 600 μm 以下，進而較佳為 500 μm 以下。若膜厚超過上述上限，則於膜內部難以控制有機溶劑之蒸發速度，殘存有機溶劑之量變多，於片材化步驟中之高溫加壓處理下蒸發，殘留溶劑之蒸發痕跡成為空隙，無法形成具有高熱傳導性、高絕緣性、既定物理強度等之片材。相反地，於未滿上述下限之情形時，有機溶劑於短時間內蒸發，因此樹脂過度乾燥，不僅無法獲得強度良好之塗佈膜，且有如下傾向：即便藉由片材化步驟中之樹脂之可塑化亦無法獲得充分之流動性，樹脂無法充分浸透至片材內所存在之空隙內，無法形成具有高熱傳導性、高絕緣性、既定物理強度等之片材。

【0112】 此時，可於一定溫度下進行加熱處理，為了使塗佈液中之有機溶劑等揮發成分之去除順利進行，亦可於減壓條件下進行加熱處理。又，亦可於樹脂不會進行硬化之範圍內，通過階段性升溫進行加熱處理。例如可首先於 25~40℃、例如 30℃ 下，繼而於 40~90℃、例如 50℃ 下各實施 30 分鐘~60 分鐘左右之加熱處理。經過該乾燥步驟所獲得之塗佈乾燥物中之具有 150℃ 以上之有機化合物量超過 0 ppm，較佳為 0.001 ppm 以上，更佳為 0.1 ppm 以上，進而較佳為 1 ppm 以上，且，為 1800 ppm 以下，較佳為 1500 ppm 以下，更佳為 1300 ppm 以下。若為該範圍內，則利用本製造方法所獲得之片材表現出較高之熱傳導性與耐電壓值。

【0113】 又，塗佈乾燥物中之沸點為 100°C 以下之有機化合物量通常超過 0 ppm，較佳為 0.01 ppm 以上，更佳為 1 ppm 以上，進而較佳為 5 ppm 以上，尤佳為 7 ppm 以上，且，通常為 50 ppm 以下，較佳為 30 ppm 以下，更佳為 19 ppm 以下，進而較佳為 18 ppm 以下。若為上述範圍，則可更有效地發揮本發明之效果。再者，塗佈乾燥物中之上述有機化合物之含量可利用頂空氣相層析儀進行測定。

【0114】

<片材化步驟>

於乾燥步驟後，進行對塗佈乾燥物加壓、成形之步驟(片材化步驟)。片材化步驟中，通常將塗佈、乾燥於銅基板上之塗佈乾燥物切割成既定大小。進行片材化時之加熱溫度(壓製溫度)通常為 80°C 以上，較佳為 90°C 以上，更佳為 100°C 以上，進而較佳為 110°C 以上，且，通常為 300°C 以下，較佳為 250°C 以下，更佳為 200°C 以下。於該加熱溫度未滿上述下限之情形時，熱硬化反應無法充分進行，BN 凝集粒子彼此之接觸或 BN 凝集粒子與樹脂界面之接觸亦變得不充分，因此無法形成具有高熱傳導性、高絕緣性、既定物理強度等之片材。相反地，於超過上述範圍之上限之情形時有如下傾向：樹脂易發生分解，因該分解引起之空隙或分子量之下降導致無法形成具有高熱傳導性、高絕緣性、既定物理強度等之片材。

【0115】 為促進對上述銅基板之接著所進行之加壓步驟(亦稱為壓製處理)中之壓製方法可採用公知技術進行，例如可利用等靜水壓壓製、真空壓製、帶式壓製、加熱壓製、伺服壓製、研光輥等公知方法進行成形。關於壓製壓力，對銅基板上之乾燥膜通常加壓 10 kgf/cm^2 以上，較佳為 150 kgf/cm^2 以上，更佳為 200 kgf/cm^2 以上，進而較佳為

250 kgf/cm² 以上，且，通常加壓 2000 kgf/cm² 以下，較佳為 1000 kgf/cm² 以下，更佳為 900 kgf/cm² 以下，進而較佳為 800 kgf/cm² 以下。藉由將該加壓時之加重設為上述上限以下，可於 BN 凝集粒子不會遭到破壞之情況下使片材中無空隙等，而可獲得具有較高熱傳導性之片材。又，藉由將加重設為上述下限以上，BN 凝集粒子間之接觸變得良好，易形成熱傳導通道，因此可獲得具有較高熱傳導性之片材。

【0116】 尤其於會經過熱硬化步驟之片材化步驟中，較佳為施加上述範圍之加重而進行加壓、硬化。於熱硬化步驟中，於通常 80℃ 以上、較佳為 100℃ 以上、例如 100～200℃ 之溫度下對塗佈、乾燥於銅基板上之組成物膜施加 1～30 分鐘左右之既定加重而加壓，藉此會降低塗佈・乾燥膜中之樹脂熔融黏度，與此同時於一定程度上進行硬化反應，而進行促進對銅基板之接著之加壓步驟與其後用以使樹脂膜完全硬化之硬化步驟，該硬化步驟係藉由利用烘箱等於所需硬化溫度，例如 150℃ 以上加熱 2～4 小時左右而進行硬化反應從而製作片材。硬化步驟中完全硬化時之加熱溫度之上限為所使用之樹脂不會發生分解、變質之溫度，根據樹脂之種類、等級而適當決定，通常於 300℃ 以下進行。

【0117】 又，具有對使用 BN 凝集粒子所成形之本發明之片材之雙面貼合銅而成之散熱片材的電路基板，正是由於使用本發明之 BN 凝集填料，故而藉由利用習知未能實現之高熱傳導性所發揮出之散熱效果及高可靠性，可實現裝置之高輸出、高密度化，因此適於作為功率半導體裝置之散熱基板或散熱片材。於功率半導體裝置中，本發明之散熱片材以外之鋁配線、密封材、封裝材、散熱器、熱膠、焊料等構件可適當採用習知公知之構件。

【0118】 所謂電路基板，基本上呈現對本發明之散熱片材之雙面貼合銅或鋁、較佳為銅而成之形狀，於單側對電路進行圖案化。關於積層方法，亦可如上所述藉由製膜壓製成型進行製造。電路基板圖案化之方法並無特別限定，例如可藉由如日本專利特開 2014-209608 號公報之文獻所記載之既知方法進行製造。又，製成電路基板時之層厚亦並無特別限定，通常為 10 μm 以上，較佳為 100 μm 以上，更佳為 300 μm 以上，進而較佳為 500 μm 以上，尤佳為 1000 μm 以上。且，通常為 5000 μm 以下。

【0119】 散熱片材部分之層厚亦並無特別限定，通常為 80 μm 以上，較佳為 100 μm 以上，更佳為 200 μm 以上。且，通常為 1000 μm 以下。又，成為散熱部之銅部分之層厚亦並無特別限定，通常為 10 μm 以上，較佳為 100 μm 以上，更佳為 300 μm 以上，尤佳為 500 μm 以上，進而尤佳為 1000 μm 以上。且，通常為 5000 μm 以下。

【0120】

・片材之物性

又，本發明之片材係含有氮化硼凝集粒子(以下稱為「BN 凝集粒子」)者，其特徵在於：對該片材進行 X 射線繞射測定所測得之該片材中之氮化硼一次粒子(以下稱為「BN 一次粒子」)之(100)面與(004)面之峰強度比[(100)/(004)]為 1.0 以上，且由對該片材進行 X 射線繞射測定所測得之該片材中之 BN 一次粒子之(002)面峰值所求出之 BN 一次粒子之平均微晶粒徑為 375 Å 以上。

【0121】 本發明之片材藉由滿足上述物性，而成為具有較高熱傳導率且耐電壓性能優異之片材，可較佳地使用作為散熱構件。成為發揮如此優異性能之片材的原因在於：藉由[(100)/(004)]之強度比成為上

述以上，而於片材之垂直方向上一次粒子之 ab 面進行配向之比例較高，BN 所具有之高熱傳導率可於作為片材時得以發揮，又，藉由使一次粒子之大小成為 $375 \text{ \AA}$ 以上，而減少一次粒子間之界面，從而抑制界面間成為熱阻。

【0122】 本發明之片材係至少含有氮化硼凝集粒子者，且對該片材進行 X 射線繞射測定所測得之該片材中之 BN 一次粒子之(100)面與(004)面之峰強度比((100)/(004))為 1.0 以上。該峰強度比((100)/(004))較佳為 1.5 以上，更佳為 2.0 以上，進而較佳為 2.5 以上，尤佳為 3.0 以上。上限並無特別限制，通常 10.0 以下，較佳為 7.0 以下，更佳為 5.0 以下。若該數值過大，則朝向與片材面垂直方向之 BN 一次粒子之比例變得過高，於進行壓製等成形步驟時，片材內易形成微小裂縫。上述裂縫有導致耐電壓等電特性變低之傾向。又，若數值過小，則朝向與片材面垂直方向之 BN 一次粒子之比例變低，有熱傳導率變低之傾向。

【0123】 進而，由對該片材進行 X 射線繞射測定所測得之該片材中之 BN 一次粒子之(002)面峰值所求出之 BN 一次粒子平均微晶粒徑並無特別限制，較佳為通常 $300 \text{ \AA}$ 以上、較佳為 $320 \text{ \AA}$ 以上、更佳為 $375 \text{ \AA}$ 以上、進而較佳為 $380 \text{ \AA}$ 以上、進而更佳為 $390 \text{ \AA}$ 以上、尤佳為 $400 \text{ \AA}$ 以上，且通常 $5000 \text{ \AA}$ 以下、較佳為 $2000 \text{ \AA}$ 以下、進而較佳為 $1000 \text{ \AA}$ 以下之片材。若該數值過大，則於壓製步驟等片材成形時有如下傾向：凝集粒子內之卡屋構造遭到破壞，朝向與片材面垂直方向之 BN 一次粒子 ab 面之比例減小，熱傳導度變低。又，若數值過小，則有因 BN 一次粒子界面增多而成為熱阻，從而熱傳導度變低之傾向。

【0124】 本發明之片材係至少含有氮化硼凝集粒子者，對該片材

進行 X 射線繞射測定所測得之該片材中之 BN 一次粒子之(100)面與(004)面之峰面積強度比((100)/(004))並無特別限制，通常為 0.6 以上，較佳為 0.65 以上，更佳為 0.7 以上，更佳為 0.75 以上，進而較佳為 0.8 以上，尤佳為 0.85 以上。且，上限並無特別限制，通常為 10.0 以下，較佳為 5.0 以下，更佳為 4.0 以下。若該數值過大，則有如下傾向：凝集粒子內之卡屋構造遭到破壞，朝向與片材面垂直方向之 BN 一次粒子 ab 面之比例減小，熱傳導度變低。又，若數值過小，則有因 BN 一次粒子界面增多而成為熱阻，從而熱傳導度變低之傾向。

【0125】 又，散熱片材之熱傳導率(W/mK)並無特別限制，通常為 5 W/mK 以上，較佳為 10 W/mK 以上，更佳為 13 W/mK，尤佳為 15 W/mK 以上，特佳為 17 W/mK 以上。耐電壓性能通常為 10 kV/mm 以上，較佳為 15 kV/mm 以上，尤佳為 20 kV/mm 以上。又，本發明之片材之玻璃轉移溫度通常為 100℃ 以上，較佳為 130℃ 以上，尤佳為 175℃ 以上。又，散熱片材之接著強度(N/cm)並無特別限制，通常為 0.5 N/cm 以上，較佳為 1 N/cm 以上，更佳為 2 N/cm，尤佳為 3 N/cm 以上，特佳為 5 N/cm 以上。

[實施例]

【0126】 以下藉由實施例更詳細地說明本發明，但本發明只要未超過其主旨，則並不限定於以下之實施例。再者，下述實施例中之各種條件或評價結果之值係與本發明之實施樣態中之較佳範圍同樣地表示本發明之較佳範圍，本發明之較佳範圍可考慮到由上述實施樣態中之較佳範圍與下述實施例之值或實施例彼此之值之組合所表示的範圍而決定。

【0127】

{測定條件}

本發明中之特性係利用以下所記載之方法進行測定。

- 黏度：

使用 FUNGILAB 公司之旋轉黏度計「VISCO BASIC Plus R」，以葉片轉速 100 rpm 進行測定。

【0128】

- BN 凝集粒子之平均粒徑(D_{50})：

使用 Malvern 公司製造之「Morphologi」測定 BN 凝集粒子之 $D_{50}(\mu\text{m})$ 。

【0129】

- BN 一次粒子之平均微晶粒徑：

根據由粉末 X 射線繞射測定所測得之源自 BN 一次粒子之(002)面的峰值，使用 Scherrer 式求出平均微晶粒徑。粉末 X 射線繞射測定係使用 PANalytical 公司製造之 X 射線繞射裝置「X'Pert Pro MPD」。所謂 Scherrer 式係下式。

$$D = (K \cdot \lambda) / (\beta \cdot \cos\theta)$$

此處， D ：微晶粒徑、 K ：Scherrer 常數、 λ ：X 射線($\text{CuK}\alpha_1$)波長、 β ：峰值半值寬、 θ ：源自 $\text{CuK}\alpha_1$ 之布拉格角。又， β 係使用以下之修正式而求出。

$$\beta = (\beta_o^2 - \beta_i^2)^{0.5}$$

此處， β_i 係由標準 Si 所求出之源自裝置之半值寬， β_o 係源自 h-BN 之(002)面之峰值半值寬。各常數之值係使用下述值。

$$K = 0.9, \lambda = 1.54059 \text{ \AA}$$

【0130】

• BN 凝集粒子之峰強度比

算出藉由對 BN 凝集粒子進行粉末 X 射線繞射測定所測得之 BN 一次粒子之(100)面及(004)面之峰強度的比((100)/(004))，藉此評價 BN 凝集粒子之峰強度比。粉末 X 射線繞射測定係使用 PANalytical 公司製造之 X 射線繞射裝置「X'Pert Pro MPD」。再者，上述粉末 X 射線繞射測定，係於深度 0.2 mm 之玻璃試樣板填充 BN 凝集粒子，對測定面進行調整以使表面變得平滑，使用如此而成之試樣實施測定。

【0131】

BN 凝集粒子之峰面積強度比

向錠劑成形機(10 mm ϕ)內填充約 0.2 g 之 BN 凝集粒子，使用手動油壓式泵(理研精機公司製造之 P-1B-041)，於 0.85 ton/cm² 之壓製壓下進行錠劑成形。對所獲得之試樣使用與粉末 X 射線繞射測定相同之裝置，求出 BN 一次粒子之(100)面及(004)面之峰面積強度比((100)/(004))。將結果示於表 1。

【0132】

• 成形體之厚度方向熱傳導率

使用 ai-Phase 股份有限公司製造之熱擴散率測定裝置「ai-Phase Mobile 1u」測定成形體之厚度方向之熱擴散率，根據下式求出。

成形體之厚度方向熱傳導率＝成形體之厚度方向之熱擴散率×成形體之比重×成形體之比熱

【0133】

BN 凝集粒子、含 BN 凝集粒子之樹脂組成物及成形體之製造
(實施例 1)

<由 BN 漿體之 BN 凝集粒子之製作>



[BN 漿體(漿體 A)之製備]

(原料)

原料 h-BN 粉末(藉由粉末 X 射線繞射測定所測得之(002)面峰值之半值寬為 $2\theta = 0.67^\circ$ ，氧濃度為 7.5 質量%)：10000 g，黏合劑(多木化學(股)製造之「Takiceram M160L」，固形份濃度 21 質量%)：11496 g，界面活性劑(花王(股)製造之界面活性劑「硫酸月桂酯鈉」，固形份濃度 14 質量%)：250 g

(漿體之製備)

計量既定量之原料 h-BN 粉末置於樹脂製之瓶內，繼而添加既定量之黏合劑。進而添加既定量之界面活性劑後，添加氧化鋯性陶瓷球，於球磨機旋轉台上攪拌 1 小時。漿體黏度為 810 mPa · s。

【0134】

[造粒]

自 BN 漿體之造粒，係使用大河原化工機股份有限公司製造之 FOC-20，於盤轉速 20000~23000 rpm、乾燥溫度 80℃ 下實施，獲得球狀 BN 凝集粒子。

【0135】

[BN 凝集粒子(BN-A 凝集粒子)之製作]

將上述 BN 造粒粒子於室溫下抽真空後，導入氮氣而恢復壓力，於該狀態下一邊導入氮氣一邊以 83℃/h 升溫至 2000℃，達到 2000℃ 後，於該狀態下一邊導入氮氣一邊保持 5 小時。其後，冷卻至室溫，獲得具有卡屋構造之球狀 BN-A 凝集粒子。

【0136】

[分級]

進而，使用乳鉢及乳棒將上述加熱處理後之 BN-A 凝集粒子輕微粉碎後，使用網眼 90 μm 之篩進行分級。分級後，測定構成 BN-A 凝集粒子之 BN 一次粒子之平均微晶粒徑、該 BN 一次粒子之(100)面與(004)面之峰強度比((100)/(004))、BN-A 凝集粒子之 D_{50} 。測定結果示於表 1。

【0137】

<成形體片材之製造>

使用上述所獲得之 BN-A 凝集粒子作為填料，製備包含填料與樹脂組成物之含 BN 凝集粒子之樹脂組成物。

[樹脂組成物]

將三菱化學(股)製造之環氧樹脂「157S70」、「828US」、「4275」及四國化成工業(股)製造之硬化劑「C11Z-CN」以「157S70」:「828US」:「4275」:「C11Z-CN」=1:0.25:0.25:0.11(質量比)之比例進行混合而獲得樹脂組成物。

【0138】

[含 BN 凝集粒子之樹脂組成物之製備]

將 BN-A(BN 凝集粒子)與上述樹脂組成物以 BN-A 凝集粒子之填充量(BN-A 凝集粒子相對於樹脂組成物與 BN-A 凝集粒子之合計的含有比例)成為 80 質量%之方式進行調配。將所製備之樹脂組成物/BN-A 凝集粒子混合物 100 質量份與甲基乙基酮 50 質量份裝入聚丙烯製帶蓋杯內，進而添加相對於樹脂組成物成分 100 質量份為 6 質量份之 1-氰乙基-2-十一基咪唑(硬化劑)，使用自公轉攪拌機(Thinky 公司製造之「脫泡練太郎 AR-250」)進行混合，而製備含 BN 凝集粒子之樹脂組成物塗佈液。

【0139】

[塗佈]

利用間隙間隔 400 μm 之棒式塗佈機(TESTER 產業股份有限公司製造之「自動塗膜機」)將所獲得之含 BN 凝集粒子之樹脂組成物塗佈液塗佈於厚度 100 μm 、10 cm×20 cm 之銅基板上。其後，於 50°C 下進行 30 分鐘之真空乾燥，而於銅基板上形成塗佈膜。

【0140】

[成形體之製造]

將所獲得之形成有塗佈膜之銅版切出 4 cm 見方。裝入模具內，於 130°C、500 kg/cm^2 下進行 3 分鐘之熱壓，進而於烘箱中於 160°C 下硬化 2 小時，藉此獲得熱傳導率評價用之成形體(4 cm×4 cm)。測定結果示於表 1。

【0141】

(實施例 2)

於實施例 1 中，使漿體 A 成為將原料調配比變更為以下之 BN 漿體(漿體 B)，除此以外，以與實施例 1 相同之方式進行，製作具有卡屋構造之球狀 BN 凝集粒子(凝集 BN-B)及含 BN 凝集粒子之樹脂組成物、成形體。將測定結果示於表 1。

【0142】

[BN 漿體(漿體 B)]

(原料)

原料 h-BN 粉末：10000 g

純水：7500 g

黏合劑：5750 g

界面活性劑：250 g

(漿體製備)

計量既定量之原料 h-BN 粉末置於樹脂製之瓶內，繼而依序添加既定量之純水、黏合劑。進而添加既定量之界面活性劑後，添加氧化鋯性陶瓷球，於球磨機旋轉台上攪拌 1 小時。漿體黏度為 2200 mPa · s。

【0143】

(實施例 3)

於實施例 1 中，使漿體 A 成為將原料調配比變更為以下之 BN 漿體(漿體 C)，除此以外，以與實施例 1 相同之方式進行，製作具有卡屋構造之球狀 BN 凝集粒子(凝集 BN-C)及含 BN 凝集粒子之樹脂組成物、成形體。將測定結果示於表 1。

【0144】

[BN 漿體(漿體 C)]

(原料)

原料 h-BN 粉末：10000 g

黏合劑：11496 g

界面活性劑：250 g

(漿體製備)

計量既定量之原料 h-BN 粉末置於樹脂製之瓶內，繼而添加既定量之黏合劑。進而添加既定量之界面活性劑後，添加氧化鋯性陶瓷球，於球磨機旋轉台上攪拌 1 小時。漿體黏度為 1600 mPa · s。

【0145】

(比較例 1)

使實施例 2 中之漿體 B 成為原料調配比發生改變之以下所示之漿

體 D，除此以外，以與實施例 2 相同之方式進行，製作 BN 凝集粒子 (BN-D 凝集粒子)及含 BN 凝集粒子之樹脂組成物、成形體。漿體黏度為 155 mPa・s。將測定結果示於表 1。

【0146】

[BN 漿體(漿體 D)]

漿體 D 調配

(原料)

原料 h-BN 粉末：2400 g

純水：2199 g

黏合劑：1380 g

界面活性劑：60 g

【0147】

(比較例 2)

以與實施例 1 相同之方式進行漿體製備及造粒，將 BN 凝集粒子製作時之煅燒溫度設為 1300℃、保持時間設為 24 h，除此以外，以與實施例 1 相同之方式製作 BN 凝集粒子(凝集 BN-E)。使用該 BN 凝集粒子，以與實施例 1 相同之方法進行含 BN 凝集粒子之樹脂組成物之製作、成形體之製造。將結果示於表 1。

【0148】

(比較例 3)

使用 Momentive 公司製造之 PTX60 代替實施例 1 之 BN-A 凝集粒子，除此以外，以與實施例 1 相同之方式進行含 BN 凝集粒子之樹脂組成物及成形體之製造。將結果示於表 1。

【0149】

(比較例 4)

使用 Momentive 公司製造之 PTX25 代替實施例 1 之 BN-A 凝集粒子，除此以外，以與實施例 1 相同之方式進行。將結果示於表 1。

【0150】

(比較例 5)

使用電氣化學工業公司製造之 SGPS 代替實施例 1 之 BN-A 凝集粒子，除此以外，以與實施例 1 相同之方式進行含 BN 凝集粒子之樹脂組成物及成形體之製造。將結果示於表 1。

【0151】

(比較例 6)

使用 Saint-Gobain 公司製造之 CTS7M 代替實施例 1 之 BN-A 凝集粒子，除此以外，以與實施例 1 相同之方式進行含 BN 凝集粒子之樹脂組成物及成形體之製造。將結果示於表 1。

【0152】

(比較例 7)

以與實施例 1 相同之方式進行漿體製備及造粒，將 BN 凝集粒子製作時之煅燒溫度設為 1600℃、保持時間設為 24 h，除此以外，以與實施例 1 相同之方式製作 BN 凝集粒子(凝集 BN-F)。使用該 BN 凝集粒子，以與實施例 1 相同之方法進行含 BN 凝集粒子之樹脂組成物之製作、成形體之製造。將結果示於表 1。

【0153】

(比較例 8)

於實施例 2 中，將漿體 B 之原料調配比設為變更為以下之 BN 漿體(漿體 E)，除此以外，以與實施例 1 相同之方式進行。

【0154】

[BN 漿體(漿體 E)]

(原料)

原料 h-BN 粉末：10000 g

純水：7750 g

黏合劑：5750 g

【0155】

(漿體製備)

計量既定量之原料 h-BN 粉末置於樹脂製之瓶內，繼而依序添加既定量之純水、黏合劑。進而添加氧化鋯性之陶瓷球，於球磨機旋轉台上攪拌 1 小時。漿體黏度為 8000 mPa · s。

【0156】 [表 1]

表 1

片材										
	填料								BN 凝集 粒子之填 充量 (質量%)	熱傳 導率 (W/mK)
	凝集粒子	漿體黏度 (mPa · s)	構造	BN 凝集粒子 之平均粒徑 D ₅₀ (μm)	比表面積 (m ² /g)	BN 一次粒 子之平均 微晶粒徑 (Å)	BN 一次粒子 之峰強度比 (100)/(004)	BN 一次粒子 之峰面積強度比 (100)/(004)		
實施例 1	BN-A	810	卡屋構造	50	5.92	415	3.6	0.96	80	15.0
實施例 2	BN-B	2200	卡屋構造	54	7.06	383	3.9	0.91	80	17.4
實施例 3	BN-C	1600	卡屋構造	40	3.95	456	3.4	0.90	80	15.0
比較例 1	BN-D	155	卡屋構造	5	22.9	250	6.0	0.77	80	11.0
比較例 2	BN-E	810	卡屋構造	50	12.7	153	5.7	1.61	80	3.2
比較例 3	PTX60	-	非卡屋構造	60	5.8	370	2.8	0.21	80	11.4
比較例 4	PTX25	-	非卡屋構造	25	5.6	537	1.4	0.05	80	8.8
比較例 5	SGPS	-	非卡屋構造	12	-	648	-	0.18	80	9.3
比較例 6	CTS7M	-	非卡屋構造	120	-	305	-	0.12	80	10.7
比較例 7	BN-F	810	卡屋構造	47	7.32	161	3.9	0.97	80	8.8
比較例 8	-	8000	-	無法 造粒	-	-	-	-	-	-

【0157】

BN 凝集粒子成形壓縮成形體中之 BN 一次粒子之(100)/(004)面之峰面積強度比之評價

(實施例 4)

於錠劑成形機(10 mm ϕ)內填充約 0.2 g 之實施例 1 中所製作之 BN-A 凝集粒子，使用手動油壓式泵(理研精機公司製造之 P-1B-041)，於表 2 所記載之各種壓製壓下進行錠劑成形。對所獲得之試樣，使用與粉末 X 射線繞射測定相同之裝置，求出 BN 一次粒子之(100)面及(004)面之峰面積強度比((100)/(004))。將結果示於表 2。

【0158】

(實施例 5)

於錠劑成形機(10 mm ϕ)使用實施例 2 中所製作之 BN-B 凝集粒子作為約 0.2 g 之 BN 凝集粒子，除此以外，以與實施例 4 相同之方式求出 BN 一次粒子之(100)面與(004)面之峰面積強度比((100)/(004))。將結果示於表 2。

【0159】

(比較例 9)

使用 BN-E 凝集粒子作為 BN 凝集粒子，除此以外，以與實施例 4 相同之方式求出 BN 一次粒子之(100)面與(004)面之峰面積強度比((100)/(004))。將結果示於表 2。

【0160】

(比較例 10)

使用 Momentive 公司製造之 PTX60 凝集粒子作為 BN 凝集粒子，除此以外，以與實施例 4 相同之方式求出 BN 一次粒子之(100)面與(004)面之峰面積強度比((100)/(004))。將結果示於表 2。

【0161】

(比較例 11)

使用 Momenitive 公司製造之 PTX25 作為 BN 凝集粒子，除此以外，以與實施例 4 相同之方式求出 BN 一次粒子之(100)面與(004)面之峰面積強度比((100)/(004))。將結果示於表 2。

【0162】

(比較例 12)

使用電氣化學工業公司製造之 SGPS 作為 BN 凝集粒子，除此以外，以與實施例 4 相同之方式求出 BN 一次粒子之(100)面與(004)面之峰面積強度比((100)/(004))。將結果示於表 2。

【0163】

(比較例 13)

使用 Saint-Gobain 公司製造之 CTS7M 作為 BN 凝集粒子，除此以外，以與實施例 4 相同之方式求出 BN 一次粒子之(100)面與(004)面之峰面積強度比((100)/(004))。將結果示於表 2。

【0164】

(比較例 14)

使用 BN-F 凝集粒子作為 BN 凝集粒子，除此以外，以與實施例 4 相同之方式求出 BN 一次粒子之(100)面與(004)面之峰面積強度比((100)/(004))。將結果示於表 2。

【0165】 [表 2]

表 2

	填料			
	BN 凝集 粒子	BN 一次粒子之平均微晶 粒徑(Å)	錠劑成形壓力 (ton/cm ²)	BN 一次粒子之峰面積強 度比(100)/(004)
實施例 4	BN-A	415	0.85	0.96
			1.69	0.92
			2.54	0.77
實施例 5	BN-B	383	0.85	0.91
			1.69	0.74
			2.54	0.65
比較例 9	BN-E	153	0.85	1.61
			1.69	1.53
			2.54	1.24
比較例 10	PTX60	370	0.85	0.20
			1.69	0.18
			2.54	0.16
比較例 11	PTX25	537	0.85	0.05
			1.69	-
			2.54	0.05
比較例 12	SGPS	648	0.85	0.18
			1.69	0.17
			2.54	0.16
比較例 13	CTS7M	305	0.85	0.12
			1.69	0.10
			2.54	0.10
比較例 14	BN-F	161	0.85	0.97
			1.69	0.82
			2.54	0.68

【0166】 由表 1 得知，藉由使用本發明之 BN 凝集粒子，作為成形體而表現出較高熱傳導性。於平均微晶粒徑未滿 375 Å 之比較例 1、2 中，熱傳導性較低，雖平均微晶粒徑超過 375 Å，但藉由對 BN 凝集粒子之粉末 X 射線繞射測定所測得之 BN 一次粒子之(100)面與(004)面之峰強度比((100)/(004))未滿 3 的比較例 4 亦無法達成較高熱傳導率。因此，構成 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子之平均微晶粒徑為 375 Å 以上，且藉由粉末 X 射線繞射測定所測得之 BN 一次粒子之(100)面與(004)面之峰強度比((100)/(004))為 3 以上的本發明之 BN 凝集粒子作為熱傳導性填料可發揮習知未能實現之性能，可廣泛應用於熱課題較多之電氣電子領域等各種用途。



【0167】 進而，根據表 1 之結果與表 2，藉由使用即便於特定壓力以上 BN 一次粒子之(100)面與(004)面之峰面積強度比((100)/(004))亦為 0.25 以上，且 BN 一次粒子之平均微晶粒徑大於 375 Å 的凝集粒子，可獲得厚度方向上表現出較高熱傳導性之片材。

【0168】 以下對本發明之另一樣態(第二要旨)之實施例進行說明。以下記載實施例中之測定條件，但以下所記載之外係採用上述所說明之測定條件。

【0169】

BN 一次粒子之(100)/(004)面峰強度比：

通過計算藉由對 BN 凝集粒子之粉末 X 射線繞射測定所測得之 BN 一次粒子之(100)面與(004)面之峰強度的比((100)/(004))而求出。

【0170】

BN 一次粒子之(100)/(004)峰面積強度比：

於錠劑成形機(10 mm ϕ)內填充約 0.2 g 之粉末，使用手動油壓式泵(理研精機公司製造之 P-1B-041)，於壓製壓 0.85 ton/cm² 下進行錠劑成形，將所獲得之試樣供於測定。測定係使用荷蘭 PANalytical 公司製造之 X'Pert Pro MPD 粉末 X 射線繞射裝置進行，藉此可計算所對應之峰面積之強度比。

【0171】

散熱片材之 X 射線繞射測定：

使用 PANalytical 公司製造之 X 射線繞射裝置(X'Pert Pro MPD)。再者，使用壓製成形之散熱片材作為試樣品而實施。

將測定條件示於以下。

試樣保持器：無反射試樣板，靶：CuK α ，輸出：40 kV、30 mA

測定範圍：5～100°，步距角：0.016°，掃描速度：0.05°/sec，可變狹縫：10 mm

【0172】

散熱片材之(100)/(004)面峰強度比：

通過計算藉由對散熱片材之 X 射線繞射測定所測得之 BN 一次粒子之(100)面與(004)面之峰強度的比((100)/(004))而求出。

【0173】

散熱片材之(100)/(004)峰面積強度比：

通過計算藉由對散熱片材之 X 射線繞射測定所測得之 BN 一次粒子之(100)面與(004)面之峰面積強度的比((100)/(004))而求出。

【0174】

散熱片材之 BN 一次粒子之平均微晶粒徑：

依據上述 BN 一次粒子之平均微晶粒徑之測定方法。

密接性試驗：

將塗佈於基材上所獲得之散熱片材切出 25 mm×60 mm 之大小，藉由與 25 mm×110 mm 之基材加熱壓製貼合接著而製成測定試樣，將該測定試樣固於樹脂板後，實施 90°剝離試驗，藉此求出。試驗係使用 ORIENTEC 公司製造之 STA-1225 進行。

【0175】

(實施例 6)

將具有卡屋構造之 BN 凝集粒子 BN-A 4.7 g、非卡屋構造之氮化硼 PTX25(Momentive(股)製造， D_{50} ：19.8 μm ，BN 一次粒子之(100)/(004)面峰強度比：1.4，BN 一次粒子之平均微晶粒徑：537 Å)1.6 g 及含有相對於環氧樹脂總量為 16.7 質量%之含雙酚 A 型苯氧基樹脂之苯氧基

樹脂的環氧樹脂(T_g : 190°C)2.12 g、溶劑(環己酮/甲基乙基酮)6.2 g、分散劑(商品名：BYK-2155，BYK-Chemie Japan(股)製造)0.41 g、1-氰乙基-2-十一基咪唑(商品名：C11Z-CN，四國化成工業(股)製造)0.13 g 進行混合，製備散熱片材用漿體。利用刮刀法將所製備之散熱片材用漿體塗佈於基材，進行加熱乾燥後進行壓製而獲得片材厚約 $200\text{ }\mu\text{m}$ 之散熱片材。

【0176】

(實施例 7)

將具有卡屋構造之 BN 凝集粒子 BN-A 4.7 g、非卡屋構造之氮化硼 PTX25(Momentive(股)製造， D_{50} : $19.8\text{ }\mu\text{m}$ ，BN 一次粒子之(100)/(004)面峰強度比：1.4，BN 一次粒子之平均微晶粒徑： $537\text{ }\text{\AA}$)1.6 g 及含有相對於環氧樹脂總量為 20 質量%之含雙酚 F 型苯氧基樹脂之苯氧基樹脂的環氧樹脂(T_g : 31°C)2.12 g、溶劑(環己酮/甲基乙基酮)6.2 g、分散劑(商品名：BYK-2155，BYK-Chemie Japan(股)製造)0.41 g、1-氰乙基-2-十一基咪唑(商品名：C11Z-CN，四國化成工業(股)製造)0.13 g 進行混合，製備散熱片材用漿體。利用刮刀法將所製備之散熱片材用漿體塗佈於基材，進行加熱乾燥後進行壓製而獲得片材厚約 $200\text{ }\mu\text{m}$ 之散熱片材。

【0177】

(實施例 8)

將具有卡屋構造之 BN 凝集粒子 BN-A(D_{50} : $50\text{ }\mu\text{m}$)5.5 g、具有卡屋構造之 BN 凝集粒子 BN-D(D_{50} : $14\text{ }\mu\text{m}$)1.8 g 及環氧樹脂(T_g : 190°C)1.0 g、溶劑(環己酮/甲基乙基酮)6.2 g、分散劑(商品名：BYK-2155，BYK-Chemie Japan(股)製造)0.40 g、1-氰乙基-2-十一基咪唑(商品名：

C11Z-CN，四國化成工業(股)製造)0.06 g 進行混合，製備散熱片材用漿體。利用刮刀法將所製備之散熱片材用漿體塗佈於基材，進行加熱乾燥後進行壓製而獲得片材厚約 200 μm 之散熱片材。使用所製備之散熱片材用漿體，以與實施例 6 相同之方式獲得片材厚約 200 μm 之散熱片材。對所獲得之散熱片材進行熱傳導率測定、耐電壓測定、X 射線繞射測定。此時之片材壓製壓為 300 kg 重/ cm^2 ，圖 5 為片材剖面 SEM 照片。如此本發明之 BN 凝集粒子即便於上述壓製壓下壓製亦保持壓製前之粉末形狀，認為此係發揮本發明效果之原因之一。更具體而言，如圖 5 所示之片材：於 300 kg 重/ cm^2 之片材壓製壓下，可觀察到保持凝集粒子形態之 BN 凝集粒子，尤其亦可觀察到卡屋構造。

【0178】

(比較例 15)

將非卡屋構造之氮化硼 PTX60(Momentive(股)製造， D_{50} : 55.8 μm ，BN 一次粒子之(100)/(004)面峰強度比：2.8，BN 一次粒子之平均微晶粒徑：370 Å)4.6 g、非卡屋構造之氮化硼 PTX25(Momentive(股)製造， D_{50} : 19.8 μm ，BN 一次粒子之(100)/(004)面峰強度比：1.4，BN 一次粒子之平均微晶粒徑：537 Å)1.5 g 及環氧樹脂(T_g : 190°C)2.1 g、溶劑(環己酮/甲基乙基酮)7.2 g、分散劑(商品名：BYK-2155，BYK-Chemie Japan(股)製造)0.40 g、1-氰乙基-2-十一基咪唑(商品名：C11Z-CN，四國化成工業(股)製造)0.13 g 進行混合，製備散熱片材用漿體。使用所製備之散熱片材用漿體，以與實施例 6 相同之方式利用刮刀法塗佈於基材，進行加熱乾燥後進行壓製而獲得片材厚約 200 μm 之散熱片材。對所獲得之散熱片材進行熱傳導率測定、耐電壓測定、X 射線繞射測定。

【0179】

(比較例 16)

將非卡屋構造之氮化硼 PTX60(Momentive(股)製造, D_{50} : 55.8 μm , BN 一次粒子之(100)/(004)面峰強度比: 2.8, BN 一次粒子之平均微晶粒徑: 370 Å)5.5 g、具有卡屋構造之 BN 凝集粒子 BN-D(D_{50} : 14 μm)1.8 g 及環氧樹脂(T_g : 190°C)1.0 g、溶劑(環己酮/甲基乙基酮)6.1 g、分散劑(商品名: BYK-2155, BYK-Chemie Japan(股)製造)0.40 g、1-氰乙基-2-十一基咪唑(商品名: C11Z-CN, 四國化成工業(股)製造)0.06 g 進行混合, 製備散熱片材用漿體。使用所製備之散熱片材用漿體, 以與實施例 6 相同之方式獲得片材厚約 200 μm 之散熱片材。對所獲得之散熱片材進行熱傳導率測定、耐電壓測定、X 射線繞射測定。將上述實施例 2、6、7、8 及比較例 1、3、15、16 之測定結果示於表 3。

【0180】 [表 3]

表 3

	粒子 1		粒子 2		成形體評價結果					
	粒子	構造	粒子	構造	成形體內之 BN 一次粒子之平 均微晶粒徑(Å)	(100) /(004)峰 強度比	(100) /(004)峰面 積強度比	熱傳導率 W/mK	耐電壓 kV/mm	接著強度 N/cm
實施例 2	BN-B	片架 構造	-	-	588	2.61	1.32	17.4	18.0	-
實施例 6	BN-A	片架 構造	氮化硼 PTX25	非片架 構造	558	2.90	1.42	19.3	24.7	1.16
實施例 7	BN-A	片架 構造	氮化硼 PTX25	非片架 構造	-	-	-	17.7	22.5	5.10
實施例 8	BN-A	片架 構造	BN-D	片架 構造	-	-	-	17.1	24.5	-
比較例 1	BN-D	片架 構造	-	-	250	4.78	2.04	8.0	-	-
比較例 3	氮化硼 PTX60	非片架 構造	-	-	693	0.59	0.34	11.4	-	-
比較例 6	氮化硼 CTS7M	非片架 構造	-	-	>1000	0.27	0.18	10.7	-	-
比較例 15	氮化硼 PTX60	非片架 構造	氮化硼 PTX25	非片架 構造	600	0.96	0.50	8.3	33.9	-
比較例 16	氮化硼 PTX60	非片架 構造	BN-D	片架 構造	-	-	-	10.6	24.4	-

【0181】 由表 3 得知，將本發明所規定之 BN 凝集粒子製成片材狀成形體，或將組合有滿足體積平均粒徑之 BN 凝集粒子與例如具有小於其之 D₅₀ 之無機粒子的組成物成形為成形體，藉此包含該等之成形體具有較高熱傳導率與較高耐電壓性，因此可獲得高散熱性能・高耐電壓性能之成形片材。同樣地得知，於包含 BN 凝集粒子與無機粒子、且該 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子之(100)/(004)面峰強度比及 BN 一次粒子之平均微晶粒徑滿足本發明規定的情形時，包含該等之成形體具有較高熱傳導率與較高耐電壓性，因此可獲得更高散熱性能及更高耐電壓性能之成形片材。詳細之作用機制尚未充分明瞭，但認為例如高散熱性能，其原因在於：藉由使用 BN 凝集粒子，而 BN 一次粒子、BN 凝集粒子之 D₅₀ 變大，因此可減小一次粒子彼此、凝集粒子彼此之界面阻抗。進而藉由併用小於 BN 凝集粒子之無機粒子，可效率良好地減少大粒子間之空隙，耐電壓性能得以進一步改善。



I687393

發明摘要

※ 申請案號：104103996

※ 申請日：104/02/05

※IPC 分類：C04B 35/583 (2006.01)
C04B 35/622 (2006.01)

【發明名稱】(中文/英文)

氮化硼凝集粒子、氮化硼凝集粒子之製造方法、含有該氮化硼凝集粒子之樹脂組成物、成形體及片材

AGGLOMERATED BORON NITRIDE PARTICLES, A METHOD FOR PRODUCING AGGLOMERATED BORON NITRIDE PARTICLES, A RESIN COMPOSITION INCLUDING THE AGGLOMERATED BORON NITRIDE PARTICLES, MOLDING, AND SHEET

【中文】

本發明之課題在於提供一種適合作為功率半導體裝置之散熱片材之熱傳導性填料且熱傳導之等向性、耐崩解性、與樹脂之混練性優異的氮化硼凝集粒子。藉由如下 BN 凝集粒子可解決上述課題，該 BN 凝集粒子係氮化硼一次粒子(以下稱為「BN 一次粒子」)凝集而成之氮化硼凝集粒子(以下稱為「BN 凝集粒子」)，其特徵在於：對利用 10 mm ϕ 之粉末錠劑成形機於 0.85 ton/cm² 之成型壓力下成型所獲得之顆粒狀試樣進行粉末 X 射線繞射測定，所測得之 BN 一次粒子之(100)面與(004)面之峰面積強度比((100)/(004))為 0.25 以上，且將該 BN 凝集粒子以表面成為平滑之方式填充於深度 0.2 mm 之玻璃試樣板後進行粉末 X 射線繞射測定，由所測得之 BN 一次粒子之(002)面峰值所求出之 BN 一次粒子之平均微晶粒徑為 375 Å 以上。

【英文】

The present invention provides agglomerated boron nitride particles excellent in isotropy of thermal conductivity, disintegration resistance and kneading property with a resin, and the agglomerated boron nitride particle is preferably used as a thermal conductive filler included in a heat releasing sheet of power semiconductor devices.

The agglomerated boron nitride particles are formed by agglomerating boron nitride primary particles, wherein a peak area intensity ratio of (100) plane and (004) plane of the boron nitride primary particles, which are obtained by a powder X-ray diffraction of pellet-shaped sample formed by the boron nitride primary particles at a forming pressure of 0.85 ton/cm^2 with a powder tablet forming apparatus with $10 \text{ mm } \phi$, is 0.25 or more, and

an average crystalline diameter of the boron nitride primary particles, calculated from the peak of (002) plane of the boron nitride primary particles obtained by a powder X-ray diffraction of a glass plate having a 0.2mm depth cove filled with the boron nitride primary particles so as to smooth the surface, is $375 \text{ \AA}$ or more.

【代表圖】

【本案指定代表圖】：第（ 1 ）圖。

【本代表圖之符號簡單說明】：

無

【本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式】：

無

【0021】

(b-2)一種含氮化硼凝集粒子之組成物，其係包含由氮化硼一次粒子凝集而成之氮化硼凝集粒子(A)與無機粒子(B)的組成物，其特徵在於：對氮化硼凝集粒子(A)進行粉末 X 射線繞射測定所測得之氮化硼一次粒子之(100)面與(004)面之峰強度比((100)/(004))為 3 以上，且由氮化硼一次粒子之(002)面峰值所求出之氮化硼一次粒子之平均微晶粒徑為 375 Å 以上。

該組成物由於將 BN 一次粒子之特定結晶面之配向保持為原樣，即，將藉由粉末 X 射線繞射測定所測得之(100)面與(004)面之峰強度比((100)/(004))保持於 3 以上，且平均微晶粒徑較大，故而除了發揮作為凝集粒子的出高熱傳導性以外，與樹脂複合化時之成形體亦表現出高熱傳導性之效果。

【0022】

(b-3)如(b-2)記載之含氮化硼凝集粒子之組成物，其特徵在於：氮化硼凝集粒子(A)之體積平均粒徑(D_{50})為 25 μm 以上，且氮化硼凝集粒子(A)之體積平均粒徑(D_{50}) > 無機粒子(B)之體積平均粒徑(D_{50})。

(b-4)如(b-1)至(b-3)中任一項記載之含氮化硼凝集粒子之組成物，其中，氮化硼凝集粒子(A)及無機粒子(B)為球狀。

(b-5)如(b-1)至(b-4)中任一項記載之含氮化硼凝集粒子之組成物，其中，相對於氮化硼凝集粒子(A)與無機粒子(B)之合計，氮化硼凝集粒子(A)的含有比例為 30~95 質量%。

(b-6)如(b-1)至(b-5)中任一項記載之含氮化硼凝集粒子之組成物，其中，無機粒子(B)為選自包含氮化硼、氮化鋁、氧化鋁、氧化鋅、氧化鎂、氧化鈹及氧化鈦之群組中的一種以上。

(b-7)一種塗佈液，其包含(b-1)至(b-6)中任一項記載之含氮化硼凝集粒子之組成物。

(b-8)一種成形體，其係使(b-1)至(b-6)中任一項記載之含氮化硼凝集粒子之組成物成形而成。

【0023】

(b-9)一種片材，其係含有氮化硼凝集粒子(A)者，其特徵在於：對該片材進行 X 射線繞射測定所測得之氮化硼一次粒子之(100)面與(004)面之峰強度比((100)/(004))為 1.0 以上及/或峰面積強度比((100)/(004))為 0.6 以上。

(b-10)一種片材，其特徵在於：進而由對該片材進行 X 射線繞射測定所測得之該片材中之 BN 一次粒子之(002)面峰值所求出之氮化硼一次粒子之平均微晶粒徑為 300 Å 以上。

(對照先前技術之功效)

【0024】 本發明之 BN 凝集粒子由於藉由粉末 X 射線繞射測定所測得之構成 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子之(100)面與(004)面之峰強度比((100)/(004))為 3 以上，故而構成 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子之特定結晶面進行配向，且由於根據 BN 凝集粒子之粉末 X 射線繞射測定中之上述 BN 一次粒子之(002)面峰值所求出之上述 BN 一次粒子之平均微晶粒徑為 375 Å 以上，故而可減弱構成 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子中之晶界處產生之聲子散射，其結果表現出較高熱傳導性。進而，即便於特定壓力範圍下進行成形之情形時，BN 一次粒子之(100)面與(004)面之峰面積強度比((100)/(004))亦為 0.25 以上，因此使含有本發明之 BN 凝集粒子之樹脂組成物成形所獲得的成形體即便於成形後，亦可保持構成 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子之特定結晶面之配向。因此，

為 3 μm 以下。再者，上述所謂長軸，係藉由 SEM 測定將所獲得之 1 粒 BN 凝集粒子放大，針對構成 1 粒 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子，將影像上可觀察到之 BN 一次粒子之最大長度平均所得之值。

【0032】

・構成 BN 凝集粒子之 BN 一次粒子之結晶構造

BN 一次粒子之結晶構造並無特別限定，就合成的容易度與熱傳導性之方面而言，較佳為包含六方晶系之 h-BN 作為主成分者。又，於包含 BN 以外之無機成分作為黏合劑之情形時，該等於熱處理過程中會結晶化，但只要包含 BN 作為主成分即可。再者，上述 BN 一次粒子之結晶構造可藉由粉末 X 射線繞射測定進行確認。

【0033】

・BN 一次粒子之平均微晶粒徑

對 BN 凝集粒子進行粉末 X 射線繞射測定，由所測得之 BN 一次粒子之(002)面峰值所求出之 BN 一次粒子之平均微晶粒徑並無特別限制，就熱傳導率之方面而言，較佳為平均微晶粒徑較大。例如通常為 300 Å 以上，較佳為 320 Å 以上，更佳為 375 Å 以上，進而較佳為 380 Å 以上，進而更佳為 390 Å 以上，尤佳為 400 Å 以上，且，通常為 5000 Å 以下，較佳為 2000 Å 以下，更佳為 1000 Å 以下。若上述平均微晶粒徑過大，則由於 BN 一次粒子過度成長，故而 BN 凝集粒子內之間隙變多，成為成形體時之成形性變差，並且因間隙變多而有熱傳導性不再提高之傾向。若上述平均微晶粒徑過小，則由於 BN 一次粒子內之粒界增多，故而於晶界處會發生聲子散射，而有成為低熱傳導之傾向。

【0034】 再者，粉末 X 射線繞射測定，係對深度 0.2 mm 之玻璃試樣板以表面成為平滑之方式填充 BN 凝集粒子並進行測定。再者，

此處所謂「平均微晶粒徑」，如下述實施例中所記載般係根據藉由粉末 X 射線繞射測定所測得之 BN 一次粒子之(002)面峰值，利用 Scherrer 式所求出之微晶粒徑。

【0035】

• BN 一次粒子之峰強度比

將成形為片材等成形體前之粉末之 BN 凝集粒子以表面成為平滑之方式填充於深度 0.2 mm 之玻璃試樣板後進行粉末 X 射線繞射測定，所測得之 BN 一次粒子之(100)面與(004)面之峰強度比((100)/(004))為 3 以上。BN 一次粒子之(100)面與(004)面之峰強度比通常為 3 以上，較佳為 3.2 以上，更佳為 3.4 以上，進而較佳為 3.5 以上，且，通常為 10 以下，較佳為 8 以下，進而較佳為 7 以下。若大於上述上限，則有於成為成形體時粒子易崩解之傾向，若未滿上述下限，則有厚度方向之熱傳導性未提高之傾向。再者，峰強度比可由通過粉末 X 射線繞射測定所測定得之該峰強度之強度比而算出。

【0036】

• BN 一次粒子之峰面積強度比

亦可通過如下方式表現：將 BN 凝集粒子利用 10 mm ϕ 之粉末錠劑成形機於 0.85 ton/cm² 之成形壓力下進行成形，對所獲得之顆粒狀試樣進行粉末 X 射線繞射測定，所測得之 BN 一次粒子之(100)面與(004)面之峰面積強度比((100)/(004))為 0.25 以上。該峰面積強度比((100)/(004))較佳為 0.3 以上，較佳為 0.5 以上，更佳為 0.7 以上，進而較佳為 0.81 以上，尤佳為 0.85 以上，特佳為 0.91 以上。且，上限並無特別限制，通常為 10.0 以下，較佳為 5.0 以下，更佳為 4.0 以下，進而較佳為 2.0 以下，尤佳為 1.6 以下。

【0182】**[絕緣電路基板之製作例]**

將具有卡屋構造之 BN 凝集粒子(A)-1 22.2 g、屬於卡屋構造之氮化硼凝集粒子(A)-2 7.3 g 及環氧樹脂(Tg : 190℃)6.7 g、溶劑(環己酮/甲基乙基酮)21.3 g、分散劑(商品名:BYK-2155, BYK-Chemie Japan(股)製造)2.3 g、1-氰乙基-2-十一基咪唑(商品名: C11Z-CN, 四國化成工業(股)製造)0.24 g 進行混合, 製備散熱片材用漿體。將所製備之絕緣散熱片材用漿體塗佈於銅箔(105 μm)。其後, 進行加熱乾燥後, 使塗佈面彼此貼合, 進行壓製, 而獲得雙面貼有銅箔之絕緣散熱片材。絕緣散熱片材部分之膜厚約為 300 μm 。

【0183】 藉由對該絕緣散熱片材之單面側進行蝕刻而圖案化, 獲得圖 4 所示之絕緣電路基板。進而進行固晶、打線而製作裝置。將其結果示於圖 6。

(產業上之可利用性)

【0184】 藉由使用本發明之 BN 凝集粒子, 可形成例如功率半導體裝置中所需之熱傳導性較高之高品質散熱片材。又, 藉由使用本發明之含 BN 凝集粒子之組成物, 可形成例如功率半導體裝置中所需之熱傳導性較高之高品質散熱片材。具有該散熱片材之功率半導體裝置對製作下一代之使用 SiC、GaN 等可高溫動作之高效率基板的功率半導體裝置有用。

【符號說明】**【0185】**

無

申請專利範圍

1. 一種 BN 凝集粒子，其係氮化硼一次粒子(以下稱為「BN 一次粒子」)凝集而成之氮化硼凝集粒子(以下稱為「BN 凝集粒子」)，其特徵在於：對利用 10 mm ϕ 之粉末錠劑成形機於 0.85 ton/cm² 之成型壓力下成型所獲得之顆粒狀試樣進行粉末 X 射線繞射測定，所測得之 BN 一次粒子之(100)面與(004)面之峰面積強度比((100)/(004))為 0.25 以上，且將該 BN 凝集粒子以表面成為平滑之方式填充於深度 0.2 mm 之玻璃試樣板後進行粉末 X 射線繞射測定，由所測得之 BN 一次粒子之(002)面峰值所求出之 BN 一次粒子之平均微晶粒徑為 320 Å 以上；BN 凝集粒子之平均粒徑 D_{50} 為 5 μ m 以上且 200 μ m 以下。

2. 如申請專利範圍第 1 項之 BN 凝集粒子，其中，BN 凝集粒子之平均粒徑 D_{50} 為 26 μ m 以上。

3. 如申請專利範圍第 1 項之 BN 凝集粒子，其中，BN 凝集粒子之比表面積為 8 m²/g 以下。

4. 如申請專利範圍第 1 項之 BN 凝集粒子，其中，BN 凝集粒子為球狀。

5. 如申請專利範圍第 1 項之 BN 凝集粒子，其中，BN 凝集粒子具有卡屋構造。

6. 一種 BN 凝集粒子組成物，其係申請專利範圍第 1 項之 BN 凝集粒子與其他填料之混合物。

7. 一種含 BN 凝集粒子之樹脂組成物，其包含樹脂與申請專利範圍第 1 項之 BN 凝集粒子。

8. 一種含 BN 凝集粒子之成形體，其包含申請專利範圍第 1 項之 BN 凝集粒子。

9. 一種申請專利範圍第 1 項之 BN 凝集粒子之製造方法，其係包括對原料氮化硼粉末之漿體(以下稱為「BN 漿體」)進行造粒之步驟，及進行加熱處理之步驟的製造 BN 凝集粒子之方法，其特徵在於：

上述原料氮化硼粉末中之氧濃度為 3 質量%以上且 10 質量%以下，於上述造粒步驟中，該 BN 漿體之黏度為 200 mPa·s 以上且 5000 mPa·s 以下，於上述加熱步驟中，於 1800℃ 以上且 2300℃ 以下進行加熱處理。

10. 一種 BN 凝集粒子，其係藉由申請專利範圍第 9 項之製造方法而獲得。

11. 一種含 BN 凝集粒子之片材，其特徵在於：

對該片材進行 X 射線繞射測定所測得之該片材中之氮化硼一次粒子(以下稱為「BN 一次粒子」)之(100)面與(004)面之峰強度比((100)/(004))為 1.0 以上，且

由對該片材進行 X 射線繞射測定所測得之該片材中之 BN 一次粒子之(002)面峰值所求出之 BN 一次粒子之平均微晶粒徑為 320 Å 以上；上述 BN 凝集粒子之平均粒徑 D_{50} 為 5 μm 以上且 200 μm 以下。

12. 如申請專利範圍第 11 項之片材，其中，對上述片材進行 X 射線繞射測定所測得之該片材中之氮化硼一次粒子(以下稱為「BN 一次粒子」)之(100)面與(004)面之峰面積強度比((100)/(004))為 0.6 以上。

13. 一種具有含 BN 凝集粒子之片材之裝置，其具有申請專利範圍第 11 項之片材作為構件之一部分。